

Theorie laserinduzierter Rekombinationsprozesse

Peter Schlagheck

Diplomarbeit
Technische Universität München
Physik-Department

angefertigt am
Max-Planck-Institut für Quantenoptik
Garching b. München

April 1996

Die vorliegende Arbeit wurde am Max-Planck-Institut für Quantenoptik unter der Leitung von Prof. Dr. Peter Lambropoulos erstellt. Teile dieser Arbeit werden in Kürze in „Zeitschrift für Physik D“ veröffentlicht werden.

Zu Dank verpflichtet bin ich neben Prof. Lambropoulos Paul Maragakis, der mich in das Gebiet eingeführt, mir nützliche Anregungen gegeben und die für die numerischen Rechnungen relevanten atomaren Parameter berechnet hat, sowie Dr. Thomas Schüßler und Dr. Andreas Wolf vom Max-Planck-Institut für Kernphysik, die mir durch die Überlassung von Meßdaten und unveröffentlichten Arbeiten sowie durch die eingehende Diskussion meiner Ergebnisse geholfen haben.

Ich erkläre hiermit, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt und nur die im Literaturverzeichnis angeführten Quellen verwendet habe.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Allgemeine Theorie der stimulierten Rekombination	3
2.1	Das System	3
2.2	Elimination des Kontinuums	5
2.3	Korrekturen höherer Ordnung	7
2.4	Ratengleichungen	9
3	Laserinduzierte Rekombinationsprozesse	12
3.1	Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand	12
3.1.1	Allgemeine Theorie	12
3.1.2	Vergleich mit einer genauen Rechnung	14
3.2	Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände	14
3.2.1	Allgemeine Theorie	14
3.2.2	Rekombination in eine Gruppe wasserstoffähnlicher Zustände	15
3.3	Laserinduzierte Zweistufenrekombination	19
3.3.1	Allgemeine Theorie	19
3.3.2	Berücksichtigung der Laserlinienbreite	24
3.3.3	Variante der Ratengleichung-Näherung	25
4	Dielektronische Rekombinationsprozesse	28
4.1	Laserinduzierte dielektronische Rekombination	28
4.1.1	Allgemeine Theorie	28
4.1.2	Modellrechnungen	31
4.2	Weitere dielektronische Rekombinationsprozesse	42
5	Anwendung auf ein Experiment	44
5.1	Beschreibung des Experiments	44
5.2	Berechnung der Parameter	46
5.2.1	Atomare Parameter	46

5.2.2	Laser-Parameter	48
5.2.3	Anfangsbesetzung	48
5.3	Numerische Ergebnisse	50
6	Zusammenfassung	67

Kapitel 1

Einleitung

Neben der Möglichkeit, Laserstrahlung durch stimulierte Photonenemission bei der Elektron-Ion-Rekombination zu verstärken [1], richtet sich das Interesse an laserinduzierter Rekombination vor allem auf die spektroskopische Analyse von Rydberg-Zuständen hochgeladener Ionen. Experimente dazu [2, 3, 4, 5, 6, 7, 8] wurden vor allem an Ionenspeicherringen durchgeführt, in denen kalte, intensive Ionen- und Elektronenstrahlen überlagert werden. Nach der laserinduzierten Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände des rekombinierten Ions können einzelne Übergänge in tieferliegende Niveaus mit einem zweiten Laser selektiv induziert werden und damit im Rekombinationsspektrum, das die gesamte Rekombinationsausbeute als Funktion der Frequenz des zweiten Lasers wiedergibt, aufgelöst werden [6, 7, 8].

Zur theoretischen Beschreibung derartiger Zweistufenprozesse wurden im Experiment [8] die Ratengleichungen für Zweiniveausysteme verwendet. Da eine Herleitung dieser Ratengleichungen aus den Grundgleichungen der Quantenmechanik für den Fall der Rekombination aus dem Kontinuum bis dahin noch nicht erfolgt war, war es nicht offensichtlich, wie diese Ratengleichungen für den Fall, daß mehrere der durch den zweiten Laser induzierten Übergänge zu einer Resonanz zusammenfallen, verallgemeinert werden müssen bzw. ob und inwieweit Kohärenzeffekte in diesem Fall eine Rolle spielen. Theoretische Untersuchungen [9, 10] zu laserinduzierter Rekombination beschränkten sich auf die Behandlung einfacher Spezialfälle, die stimulierte Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand mit monochromatischer Strahlung zeitlich konstanter Intensität beinhalten, ohne die Erweiterung auf den Fall der Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände bzw. der oben beschriebenen Zweistufenrekombination oder die Einbeziehung der Linienbreite und der zeitlichen Pulsform der Laser zu ermöglichen. Zwar können im Rahmen des Dichtematrixformalismus derartige Verallgemeinerungen berücksichtigt werden, die zeitliche Integration der daraus resultierenden Dichtematrixgleichungen, die die Dynamik aller Kontinuumszustände enthalten, ließe sich jedoch nur mit erheblichem numerischen Aufwand durchführen.

In dieser Arbeit präsentieren wir ein Verfahren, wie effektive Dichtematrixgleichungen

ohne Kontinuumsanteil und Ratengleichungen zur Beschreibung von stimulierten Rekombinationsprozessen hergeleitet werden können. Wir zeigen, wie und unter welchen Bedingungen in den allgemeinen Dichtematrixgleichungen, die laserinduzierte Rekombinationsprozesse beschreiben, der Kontinuumsanteil eliminiert werden kann und wie und unter welchen Bedingungen aus den daraus resultierenden Dichtematrixgleichungen Ratengleichungen hergeleitet werden können. Des weiteren diskutieren wir spezielle Rekombinationsprozesse, auf die dieser Formalismus angewandt werden kann. Von besonderem Interesse ist dabei neben der laserinduzierten Zweistufenrekombination die laserinduzierte dielektronische Rekombination, deren wesentliche Charakteristika wir mit Modellrechnungen erarbeiten. Abschließend wenden wir die für die Zweistufenrekombination hergeleiteten Gleichungssysteme auf das eingangs beschriebene Experiment an, um zu untersuchen, inwieweit die Dichtematrixgleichungen bzw. die Ratengleichungen in der Lage sind, das Rekombinationsspektrum eines konkreten Zweistufenexperiments zu reproduzieren.

Kapitel 2

Allgemeine Theorie der stimulierten Rekombination

2.1 Das System

Wir betrachten ein atomares System bestehend aus einem Kontinuum von Zuständen $|c\rangle$ oberhalb der Schwellenergie E_0 und einer Gruppe diskreter Zustände $|b\rangle$, die in der Nähe der Energie $E_B > E_0$ liegen, wie in Abb. 2.1 gezeigt wird.

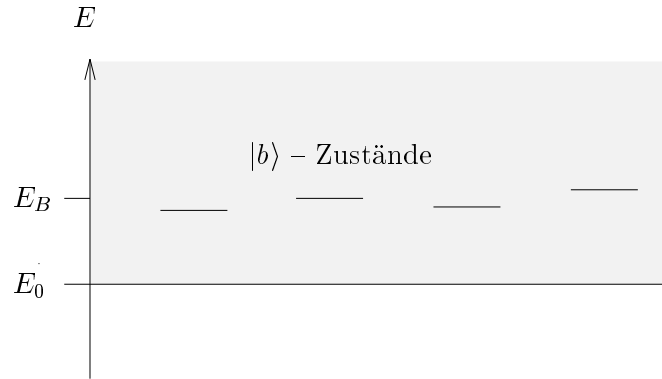


Abb. 2.1: Schematische Darstellung des atomaren Systems

Die Dynamik dieses Systems wird von dem effektiven Hamilton-Operator

$$H = H_0 + H_1 \quad (2.1)$$

bestimmt, wobei

$$H_0 = \sum_b (E_b - \frac{i}{2} \gamma_b) |b\rangle\langle b| + \int dc (E_c - \frac{i}{2} \gamma_c) |c\rangle\langle c| \quad (2.2)$$

und

$$H_1 = \sum_b \sum_{b' \neq b} H_{bb'} |b\rangle\langle b'| + \sum_b \int dc (H_{bc} |b\rangle\langle c| + H_{cb} |c\rangle\langle b|) \quad (2.3)$$

mit $H_{bb'} = H_{b'b}^*$ und $H_{bc} = H_{cb}^*$. Hier bezeichnen E_b und E_c die Energien und γ_b und γ_c die spontanen Zerfallsraten der Zustände $|b\rangle$ bzw. $|c\rangle$. Wir berücksichtigen nicht den Beitrag spontaner Übergänge innerhalb dieses Niveausystems, z.B. den Beitrag spontaner Rekombination von $|c\rangle$ nach $|b\rangle$, unter der Annahme, daß diese Übergänge zu schwach sind verglichen mit den durch H_1 induzierten Übergängen.

In Rekombinationsprozessen befindet sich das System anfangs im Kontinuum. In einem allgemeinen Rekombinationsexperiment ist es allerdings nicht möglich, den Anfangszustand des Systems durch eine Wellenfunktion $|\psi\rangle = \int dc A_c |c\rangle$ darzustellen. Alles, was man normalerweise über diesen „Anfangszustand“ weiß, sind die Wahrscheinlichkeiten p_c , das System anfangs im Zustand $|c\rangle$ vorzufinden. Um den statistischen Charakter dieser Verteilung auszudrücken, müssen wir daher die Dichtematrix ρ verwenden, die der Gleichung

$$\frac{d}{dt}\rho = -i(H\rho - \rho H^\dagger). \quad (2.4)$$

genügt. Die Anfangsbedingung lautet damit

$$\rho(t=0) = \int dc p_c |c\rangle\langle c|. \quad (2.5)$$

(Falls die Anfangsverteilung nicht nur von der Kontinuumsenergie, sondern auch noch von anderen „Kontinuum-Quantenzahlen“ abhängen sollte, seien die Zustände $|c\rangle$ so gewählt, daß $\rho(t=0)$ eine Diagonalmatrix ist.)

Strenggenommen ist so eine Anfangsbedingung nicht normierbar. In realistischen Anwendungen allerdings wird das atomare System üblicherweise in einem begrenzten Volumen V betrachtet, so daß $|c\rangle$ genaugenommen einen diskreten Zustand darstellt und $\int dc$.. eher \sum_c .. lauten sollte. Damit lautet die Normierungsbedingung für eine statistische Verteilung freier Elektronen beispielsweise

$$1 = \sum_c p_c \equiv \int dc p_c \equiv \frac{V}{(2\pi)^3} \int d^3\mathbf{k} p_{\mathbf{k}}, \quad (2.6)$$

wobei $|\mathbf{k}\rangle$ den Impulseigenzustand zum Eigenwert \mathbf{k} bezeichnet.

Die Komponenten von ρ

$$\rho_{bb'} := \langle b | \rho | b' \rangle, \quad (2.7)$$

$$\rho_{cb} := \langle c | \rho | b \rangle =: \rho_{bc}^*, \quad (2.8)$$

$$\rho_{cc'} := \langle c | \rho | c' \rangle \quad (2.9)$$

genügen den Gleichungen

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb'} = -(\gamma_{bb'} + i\omega_{bb'})\rho_{bb'} - i \sum_{b'' \neq b} H_{bb''} \rho_{b''b'}$$

$$+ i \sum_{b'' \neq b'} H_{b''b'} \rho_{bb''} - i \int dc (H_{bc} \rho_{cb'} - H_{cb'} \rho_{bc}), \quad (2.10)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{cb} &= -(\gamma_{cb} + i\omega_{cb}) \rho_{cb} - i \sum_{b'} H_{cb'} \rho_{b'b} \\ &+ i \int dc' H_{c'b} \rho_{cc'} + i \sum_{b' \neq b} H_{b'b} \rho_{cb'}, \end{aligned} \quad (2.11)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{cc'} = -(\gamma_{cc'} + i\omega_{cc'}) \rho_{cc'} - i \sum_b (H_{cb} \rho_{bc'} - H_{bc'} \rho_{cb}) \quad (2.12)$$

mit

$$\gamma_{ij} := \frac{1}{2}(\gamma_i + \gamma_j) \quad (2.13)$$

und

$$\omega_{ij} := E_i - E_j \quad (2.14)$$

für alle $i, j = b, c$.

2.2 Elimination des Kontinuums

Um die Kontinuum-Dichtematrixelemente $\rho_{cc'}$, ρ_{cb} , ρ_{bc} zu eliminieren, verwenden wir die Laplace-Transformation von (2.10 – 2.12) definiert durch

$$\hat{\rho}_{ij}(z) := \int_0^\infty \rho_{ij}(t) e^{-zt} dt. \quad (2.15)$$

Die Laplace-Transformation von (2.12) lautet damit

$$z \hat{\rho}_{cc'} = p_c \delta(c - c') - (\gamma_{cc'} + i\omega_{cc'}) \hat{\rho}_{cc'} - i \sum_b (H_{cb} \hat{\rho}_{bc'} - H_{bc'} \hat{\rho}_{cb}) \quad (2.16)$$

und kann formal nach $\hat{\rho}_{cc'}$ aufgelöst werden:

$$\hat{\rho}_{cc'} = \frac{p_c \delta(c - c')}{z + \gamma_{cc'} + i\omega_{cc'}} - i \sum_b \frac{H_{cb} \hat{\rho}_{bc'} - H_{bc'} \hat{\rho}_{cb}}{z + \gamma_{cc'} + i\omega_{cc'}}. \quad (2.17)$$

Setzen wir diesen Ausdruck in die Laplace-Transformation von (2.11) ein, so erhalten wir

$$\begin{aligned} z \hat{\rho}_{cb} &= -(\gamma_{cb} + i\omega_{cb}) \hat{\rho}_{cb} - i \sum_{b'} H_{cb'} \hat{\rho}_{b'b} + i H_{cb} \frac{p_c}{z + \gamma_c} \\ &+ i \sum_{b' \neq b} H_{b'b} \hat{\rho}_{cb'} + \sum_{b'} \int dc' \frac{H_{c'b}}{z + \gamma_{cc'} + i\omega_{cc'}} (H_{cb'} \hat{\rho}_{b'c'} - H_{b'c'} \hat{\rho}_{cb'}). \end{aligned} \quad (2.18)$$

Da die Gleichung für $\hat{\rho}_{cb}$ Kopplungen an $\hat{\rho}_{cb'}$ und $\hat{\rho}_{b'c'}$ beinhaltet, können wir dieses Gleichungssystem im allgemeinen nicht nach $\hat{\rho}_{cb}$ auflösen. In einem ersten Anlauf vernachlässigen wir daher diese Kopplungen und gehen von

$$z \hat{\rho}_{cb} = -(\gamma_{cb} + i\omega_{cb}) \hat{\rho}_{cb} - i \sum_{b'} H_{cb'} \hat{\rho}_{b'b} + i H_{cb} \frac{p_c}{z + \gamma_c} \quad (2.19)$$

aus. Damit erhalten wir

$$\hat{\rho}_{cb} = -i \sum_{b'} \frac{H_{cb'}}{z + \gamma_{cb} + i\omega_{cb}} \hat{\rho}_{b'b} + i \frac{p_c}{z + \gamma_c} \cdot \frac{H_{cb}}{z + \gamma_{cb} + i\omega_{cb}}. \quad (2.20)$$

Setzen wir diesen Ausdruck in die Laplace-Transformation von (2.10) ein, so erhalten wir

$$\begin{aligned} z \hat{\rho}_{bb'} &= -(\gamma_{bb'} + i\omega_{bb'}) \hat{\rho}_{bb'} - i \sum_{b'' \neq b'} H_{bb''} \hat{\rho}_{b''b'} + i \sum_{b'' \neq b'} H_{b''b'} \hat{\rho}_{bb''} \\ &\quad - \sum_{b''} \left(\int dc \frac{H_{bc} H_{cb''}}{z + \gamma_{cb'} + i\omega_{cb'}} \hat{\rho}_{b''b'} + \int dc \frac{H_{b''c} H_{cb'}}{z + \gamma_{cb} - i\omega_{cb}} \hat{\rho}_{bb''} \right) \\ &\quad + \int dc \frac{p_c}{z + \gamma_c} \left(\frac{H_{bc} H_{cb'}}{z + \gamma_{cb'} + i\omega_{cb'}} + \frac{H_{bc} H_{cb'}}{z + \gamma_{cb} - i\omega_{cb}} \right). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Unter der Annahme, daß H_{bc} und p_c für $E_c \approx E_B$ hinreichend langsam mit der Kontinuumsenergie E_c variieren, können wir die Pol-Approximation durchführen: In dem Integral

$$\int dc \frac{H_{bc} H_{cb''}}{z + \gamma_{cb'} + i\omega_{cb'}} \hat{\rho}_{b''b'}$$

beispielsweise ersetzen wir z durch $-i\omega_{b'b'}$, den Wert des Imaginärteils des Pols von $\hat{\rho}_{b''b'}$ in erster Näherung, und führen die Integration für $\gamma_{cb'} \rightarrow 0$ durch. Die Anwendung dieses Verfahrens auf alle Kontinuum-Integrale in (2.21) liefert

$$\begin{aligned} z \hat{\rho}_{bb'} &= \hat{r}_{bb'}(z) - \left(\gamma_{bb'} + \frac{\Gamma_b + \Gamma_{b'}}{2} + i(\omega_{bb'} - \delta_b + \delta_{b'}) \right) \hat{\rho}_{bb'} \\ &\quad - \sum_{b'' \neq b} (iH_{bb''} + i\Omega_{bb''}) \hat{\rho}_{b''b'} - \sum_{b'' \neq b'} (iH_{b'b''} + i\Omega_{b'b''})^* \hat{\rho}_{bb''}, \end{aligned} \quad (2.22)$$

wobei

$$\Gamma_b := 2\pi \int dc |H_{bc}|^2 \delta(\omega_{cb}), \quad (2.23)$$

$$\delta_b := \mathcal{P} \int dc \frac{|H_{bc}|^2}{\omega_{cb}}, \quad (2.24)$$

$$i\Omega_{bb'} := \pi \int dc H_{bc} H_{cb'} \delta(\omega_{cb'}) - i\mathcal{P} \int dc \frac{H_{bc} H_{cb'}}{\omega_{cb'}}, \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} r_{bb'}(t) &:= \pi \int dc H_{bc} H_{cb'} p_c e^{-\gamma_c t} (\delta(\omega_{cb}) + \delta(\omega_{cb'})) \\ &\quad + i\mathcal{P} \int dc H_{bc} H_{cb'} p_c e^{-\gamma_c t} \left(\frac{1}{\omega_{cb}} - \frac{1}{\omega_{cb'}} \right). \end{aligned} \quad (2.26)$$

Definiert man

$$\Gamma_{bb'} := \gamma_{bb'} + \frac{\Gamma_b + \Gamma_{b'}}{2}, \quad (2.27)$$

$$\delta_{bb'} := \omega_{bb'} - \delta_b + \delta_{b'}, \quad (2.28)$$

$$\bar{H}_{bb'} := H_{bb'} + \Omega_{bb'}, \quad (2.29)$$

so lautet (2.22) nach der Laplace-Rücktransformation in die Zeitdomäne

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{bb'} &= -(\Gamma_{bb'} + i\delta_{bb'}) \rho_{bb'} - \sum_{b'' \neq b} i \bar{H}_{bb''} \rho_{b''b'} \\ &\quad - \sum_{b'' \neq b'} (i \bar{H}_{b'b''})^* \rho_{bb''} + r_{bb'}(t). \end{aligned} \quad (2.30)$$

Wir sehen, daß der einzige Term, in dem die Anfangsbedingung auftritt, eine praktisch konstante Rate $r_{bb'}$ ist (γ_c ist gewöhnlich sehr klein in realistischen Systemen), die nicht nur die Besetzung im Zustand $|b\rangle$, sondern auch die Kohärenz zwischen $|b\rangle$ und $|b'\rangle$ erhöht. In der Tat erhält man im Spezialfall $p_c = 0$ für alle c dasselbe Gleichungssystem, wenn man, von der Schrödinger-Gleichung ausgehend, das Kontinuum im Amplitudenformalismus eliminiert und das resultierende Gleichungssystem in den Dichtematrixformalismus transformiert (ein Spezialfall von (2.30) mit $p_c = 0$ wird in [11] behandelt).

2.3 Korrekturen höherer Ordnung

Wir untersuchen jetzt, welche Korrekturen zu erwarten sind, wenn man über die Näherung (2.18 – 2.19) hinausgeht.

Wir beginnen mit (2.18), vernachlässigen die Kopplung an $\hat{\rho}_{b'c'}$ (die eine vernachlässigbare Modifikation des Kontinuum-Anteils aufgrund der Diskret-Kontinuum-Kopplung bewirkt) und führen die Pol-Approximation in den verbleibenden Kontinuum-Integralen durch. Unter Verwendung der Definitionen (2.23 – 2.25) und (2.29) erhalten wir

$$(z + \tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb}) \hat{\rho}_{cb} = - \sum_{b' \neq b} (i \bar{H}_{bb'})^* \hat{\rho}_{cb'} - \sum_{b'} i H_{cb'} \hat{\rho}_{b'b} + i H_{cb} \frac{p_c}{z + \gamma_c}, \quad (2.31)$$

wobei

$$\tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb} = \gamma_{cb} + i\omega_{cb} + \frac{\Gamma_b}{2} + i\delta_b. \quad (2.32)$$

Unter der Annahme, daß $|\bar{H}_{bb'}| < |\tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb}|$ gilt, kann eine Näherungslösung für $\hat{\rho}_{cb}$ mit einem iterativen Verfahren gefunden werden: Die Lösung erster Ordnung erhält man, indem man die Kopplung an $\hat{\rho}_{cb'}$ vernachlässigt:

$$\hat{\rho}_{cb}(z) = i \frac{H_{cb}}{z + \tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb}} \cdot \frac{p_c}{z + \gamma_c} - i \sum_{b'} \frac{H_{cb'}}{z + \tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb}} \hat{\rho}_{b'b}. \quad (2.33)$$

Dieser Ausdruck stellt bereits eine Korrektur von (2.20) dar, da der komplexe Pol hier gegenüber (2.20) modifiziert ist. Sofern die Pol-Approximation in den Kontinuum-Integralen in (2.21) immer noch gerechtfertigt ist, führt diese Modifikation allerdings nur zur Ersetzung $\omega_{cb} \rightarrow \omega_{cb} + \delta_b$ in den Kontinuum-Integralen in (2.23 – 2.26), die diese Größen nur sehr gering verändert, sofern H_{bc} und p_c mit der Kontinuum-Energie gering variieren.

Abgesehen davon erhält man einen Ausdruck zweiter Ordnung für $\hat{\rho}_{cb}$, indem man (2.33) in den Kopplungsterm in (2.31) einsetzt:

$$\hat{\rho}'_{cb} = \hat{\rho}_{cb} + \delta \hat{\rho}_{cb}, \quad (2.34)$$

wobei

$$\begin{aligned} \delta \hat{\rho}_{cb} &= - \sum_{b' \neq b} \frac{(\mathbf{i} \bar{H}_{bb'})^* \hat{\rho}_{cb'}}{z + \tilde{\gamma}_{cb} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb}} \\ &= - \sum_{b' \neq b} \frac{(\mathbf{i} \bar{H}_{bb'})^* \mathbf{i} H_{cb'}}{(z + \tilde{\gamma}_{cb} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb})(z + \tilde{\gamma}_{cb'} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb'})} \cdot \frac{p_c}{z + \gamma_c} \\ &\quad + \sum_{b' \neq b} \sum_{b''} \frac{(\mathbf{i} \bar{H}_{bb'})^* \mathbf{i} H_{cb''}}{(z + \tilde{\gamma}_{cb} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb})(z + \tilde{\gamma}_{cb'} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb'})} \hat{\rho}_{b''b'}. \end{aligned} \quad (2.35)$$

Setzen wir $\hat{\rho}'_{cb}$ in die Laplace-Transformation von (2.10) ein, so erhalten wir

$$(z \hat{\rho}_{bb'})' = z \hat{\rho}_{bb'} + \delta(z \hat{\rho}_{bb'}), \quad (2.36)$$

wobei

$$\begin{aligned} \delta(z \hat{\rho}_{bb'}) &= \mathbf{i} \sum_{b'' \neq b'} \int \mathrm{d}c \frac{H_{bc} (\mathbf{i} \bar{H}_{b'b''})^* \mathbf{i} H_{cb''}}{(z + \tilde{\gamma}_{cb'} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb'})(z + \tilde{\gamma}_{cb''} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb''})} \cdot \frac{p_c}{z + \gamma_c} \\ &\quad - \mathbf{i} \sum_{b'' \neq b'} \int \mathrm{d}c \frac{H_{cb'} \mathbf{i} \bar{H}_{bb''} (-\mathbf{i} H_{b''c})}{(z + \tilde{\gamma}_{cb} - \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb})(z + \tilde{\gamma}_{cb''} - \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb''})} \cdot \frac{p_c}{z + \gamma_c} \\ &\quad - \mathbf{i} \sum_{b'' \neq b'} \sum_{b'''} \int \mathrm{d}c \frac{(\mathbf{i} \bar{H}_{b'b''})^* \mathbf{i} H_{cb'''} H_{bc}}{(z + \tilde{\gamma}_{cb'} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb'})(z + \tilde{\gamma}_{cb''} + \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb''})} \hat{\rho}_{b'''b''} \\ &\quad + \mathbf{i} \sum_{b'' \neq b} \sum_{b'''} \int \mathrm{d}c \frac{H_{cb'} \mathbf{i} \bar{H}_{bb''} (-\mathbf{i} H_{b''c})}{(z + \tilde{\gamma}_{cb} - \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb})(z + \tilde{\gamma}_{cb''} - \mathbf{i} \tilde{\omega}_{cb''})} \hat{\rho}_{b''b''}. \end{aligned} \quad (2.37)$$

Nach der Durchführung der Pol-Approximation erhalten wir Integrale der Form

$$S = \int \mathrm{d}c \frac{f_c}{(\tilde{\gamma}_c + \mathbf{i} \tilde{\omega}_c)(\tilde{\gamma}'_c + \mathbf{i} \tilde{\omega}'_c)}. \quad (2.38)$$

Falls $|\tilde{\gamma}_c - \tilde{\gamma}'_c|$ und $|\tilde{\omega}_c - \tilde{\omega}'_c|$ klein sind im Vergleich zum Energiebereich, in dem f_c eine beträchtliche Variation aufweist, können wir S annähern durch

$$S \approx \mathbf{i} \int \mathrm{d}c f_c \frac{\partial}{\partial \tilde{\omega}_c} \left[\frac{1}{\tilde{\gamma}_c + \mathbf{i} \tilde{\omega}_c} \right] \quad (2.39)$$

und erhalten nach partieller Integration (sofern wir den von den Integrationsgrenzen stammenden Beitrag vernachlässigen können),

$$S \approx -\mathbf{i} \int \mathrm{d}c \frac{1}{\tilde{\gamma}_c + \mathbf{i} \tilde{\omega}_c} \cdot \frac{\partial f_c}{\partial E_c} \approx -\mathbf{i} \int \mathrm{d}c \left(\pi \delta(\tilde{\omega}_c) - \mathbf{i} \mathcal{P} \frac{1}{\tilde{\omega}_c} \right) \frac{\partial f_c}{\partial E_c}. \quad (2.40)$$

Führen wir (2.38 – 2.40) in (2.37) durch, so erhalten wir

$$\left(\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \rho_{bb'} \right)' \approx \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \rho_{bb'} + \sum_{b'' \neq b'} \bar{H}_{b'b''}^* \int \mathrm{d}c \left(\pi \delta(\omega_{cB}) - \mathbf{i} \mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} \left[p_c e^{-\gamma_c t} H_{bc} H_{cb''} \right]$$

$$\begin{aligned}
& - \sum_{b'' \neq b} \bar{H}_{bb''} \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) + i \mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} \left[p_c e^{-\gamma_c t} H_{cb'} H_{b''c} \right] \\
& - \sum_{b'' \neq b'} \sum_{b'''} \bar{H}_{b'b'''}^* \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) - i \mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} [H_{cb'''} H_{bc}] \rho_{b''b'''} \\
& + \sum_{b'' \neq b} \sum_{b'''} \bar{H}_{bb''} \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) + i \mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} [H_{cb'} H_{b''c}] \rho_{b''b'''}, \quad (2.41)
\end{aligned}$$

wobei

$$\omega_{cB} := E_c - E_B. \quad (2.42)$$

Wir sehen, daß die Korrektur erster Ordnung von (2.30) im wesentlichen die Ableitungen der Diskret-Kontinuum-Matrixelemente und der Anfangsverteilung nach der Kontinuumsenergie beinhaltet. Korrekturen zweiter und höherer Ordnung würden hauptsächlich Ableitungen höherer Ordnung nach der Kontinuumsenergie beinhalten. Sofern H_{bc} und p_c hinreichend langsam mit E_c variieren (genauer: $\frac{\partial}{\partial E_c}(H_{bc}, p_c) \ll (H_{bc}, p_c)/\Gamma_b$), spielen diese Korrekturen eine untergeordnete Rolle und wir können schlußfolgern, daß die Dichtematrixgleichungen (2.30) das betrachtete System sehr gut beschreiben.

Diese Behauptung sollte sogar zutreffen, falls $|\bar{H}_{bb'}| \gg |\tilde{\gamma}_{cb} + i\tilde{\omega}_{cb}|$. In diesem Fall müßte man die Matrixgleichung (2.31) exakt lösen. Solange die daraus resultierenden Eigenfrequenzen im Vergleich zum Energiebereich, in dem H_{bc} und p_c beträchtlich variieren, gering von $\tilde{\omega}_{cb}$ abweichen, wäre die Bedeutung der resultierenden Korrekturen der Dichtematrixgleichungen (2.30) ebenfalls gering.

Falls jedoch H_{bc} oder p_c in der Nähe von E_B zu stark variieren sollten, würde das gesamte Konzept der Pol-Approximation scheitern. In diesem Fall kann das Kontinuum nicht vollständig eliminiert werden, man müßte daher im allgemeinen die Kontinuumsdynamik in den Dichtematrixgleichungen beibehalten.

2.4 Ratengleichungen

In einem speziellen Rekombinationsproblem kann (2.30) im Prinzip analytisch gelöst werden. In praktischen Situationen könnte es allerdings vorkommen, daß eine numerische Lösung von (2.30) sinnvoller erscheint; wenn zum Beispiel die Anzahl der aneinander gekoppelten Zustände $|b\rangle$ sehr groß ist oder wenn die Kopplungskonstanten $H_{bb'}$, H_{bc} zeitabhängig sind. (Obwohl die Laplace-Transformation in diesem Fall nicht durchgeführt werden kann, stellt (2.30) nach wie vor eine gute Beschreibung des Systems dar, vorausgesetzt, $H_{bb'}$ und H_{bc} variieren zeitlich langsam verglichen mit $\int dc H_{bc} H_{cb'} e^{-(\gamma_{cb} + i\omega_{cb})t}$.)

In diesem Fall könnte es von Nutzen sein, Ratengleichungen zu studieren, die aus (2.30) durch Elimination der Außerdiagonaldichtematrixelemente $\rho_{bb'}$ hergeleitet werden können. (Man beachte, daß Ratengleichungen im allgemeinen wesentlich schneller numerisch integriert

werden können als Dichtematrixgleichungen.) Ob und wie diese Herleitung durchgeführt werden kann, hängt ab von den relativen Größenordnungen der Parameter Γ_b , δ_b , $\Omega_{bb'}$, $H_{bb'}$, $r_{bb'}$, und von deren Zeitabhängigkeit. An dieser Stelle werden wir die direkte Methode, Ratengleichungen herzuleiten, aufzeigen, die gültig ist, falls $|\bar{H}_{bb'}|$ und die zeitliche Variationsrate obiger Parameter wesentlich kleiner sind als $|\Gamma_{bb'} + i\delta_{bb'}|$ und falls $t \gg 1/|\Gamma_{bb'} + i\delta_{bb'}|$ gilt für alle $b, b' \neq b$.

In diesem Fall können wir wie folgt vorgehen. Wir integrieren formal (2.30) für die Außerdiagonaldichtematrixelemente $\rho_{bb'}$

$$\begin{aligned} \rho_{bb'}(t) = & \int_0^t \left(r_{bb'}(t') - \sum_{b'' \neq b} i \bar{H}_{bb''} \rho_{b''b'}(t') \right. \\ & \left. - \sum_{b'' \neq b'} (i \bar{H}_{b'b''})^* \rho_{bb''}(t') \right) e^{-(\Gamma_{bb'} + i\delta_{bb'})(t-t')} dt', \end{aligned} \quad (2.43)$$

vernachlässigen die Kopplungen an andere Außerdiagonaldichtematrixelemente, nähern t' durch t in den Termen innerhalb der Klammer an und erweitern die obere Integrationsgrenze auf ∞ . Dann erhalten wir

$$\rho_{bb'} = \frac{r_{bb'} - i \bar{H}_{bb'} \rho_{b'b'} - (i \bar{H}_{b'b})^* \rho_{bb}}{\Gamma_{bb'} + i\delta_{bb'}} \quad (2.44)$$

für $b \neq b'$.

Setzen wir diesen Ausdruck in (2.30) für Diagonaldichtematrixelemente ein, so erhalten wir die Ratengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{bb} = & - \left(\gamma_b + \Gamma_b - \sum_{b' \neq b} \left(\frac{i \bar{H}_{bb'} i \bar{H}_{b'b}}{\Gamma_{bb'} - i\delta_{bb'}} + \text{c.c.} \right) \right) \rho_{bb} \\ & + \sum_{b' \neq b} \frac{2\Gamma_{bb'} |\bar{H}_{bb'}|^2}{\Gamma_{bb'}^2 + \delta_{bb'}^2} \rho_{b'b'} \\ & + r_{bb} - \sum_{b' \neq b} \left(\frac{i \bar{H}_{bb'} r_{b'b}}{\Gamma_{bb'} - i\delta_{bb'}} + \text{c.c.} \right). \end{aligned} \quad (2.45)$$

Um den Einfluß der Anfangsverteilung in den Dichtematrixgleichungen (2.30) und in den Ratengleichungen (2.45) zu veranschaulichen, untersuchen wir (2.30) und (2.45) im Spezialfall isotroper Anfangsverteilung $p_c = p(E_c)$. Außerdem nehmen wir an, daß $\gamma_c = 0$ ist, daß die Matrixelemente $H_{bb'}$ und H_{bc} reell sind und daß wir den Unterschied zwischen ω_{cb} und $\omega_{cb'}$ in den Kontinuum-Integralen in (2.23 – 2.26) vernachlässigen können und alle ω_{cb} durch $\omega_{cB} := E_c - E_B$ ersetzen können. Dann erhalten wir

$$i \bar{H}_{bb'} = R_{bb'} - i S_{bb'}, \quad (2.46)$$

$$r_{bb} = p_0 \Gamma_b, \quad (2.47)$$

$$r_{bb'} = 2p_0 R_{bb'} \quad \text{für } b \neq b', \quad (2.48)$$

wobei

$$R_{bb'} := \pi \int dc H_{bc} H_{cb'} \delta(\omega_{cB}) = R_{b'b}, \quad (2.49)$$

$$S_{bb'} := \mathcal{P} \int dc \frac{H_{bc} H_{cb'}}{\omega_{cB}} - H_{bb'} = S_{b'b}, \quad (2.50)$$

$$p_0 := p(E_c = E_B). \quad (2.51)$$

Unter Verwendung dieser neuen Größen lauten dann die Dichtematrixgleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{bb} &= -\gamma_b \rho_{bb} - \Gamma_b (\rho_{bb} - p_0) \\ &\quad - \sum_{b' \neq b} ((R_{bb'} - i S_{bb'}) \rho_{b'b} + (R_{bb'} + i S_{bb'}) \rho_{bb'}), \end{aligned} \quad (2.52)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{bb'} &= -(\Gamma_{bb'} + i \delta_{bb'}) \rho_{bb'} \\ &\quad - R_{bb'} (\rho_{b'b'} + \rho_{bb} - 2p_0) + i S_{bb'} (\rho_{b'b'} - \rho_{bb}) \\ &\quad - \sum_{b'' \neq b, b'} ((R_{bb''} - i S_{bb''}) \rho_{b''b'} + (R_{bb''} + i S_{bb''}) \rho_{bb''}) \\ &\quad \text{für } b' \neq b. \end{aligned} \quad (2.53)$$

Die Ratengleichungen lauten

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{bb} &= -\gamma_b \rho_{bb} - \Gamma_b (\rho_{bb} - p_0) + \sum_{b' \neq b} \frac{4\delta_{bb'} R_{bb'} S_{bb'}}{\Gamma_{bb'}^2 + \delta_{bb'}^2} (\rho_{bb} - p_0) \\ &\quad + \sum_{b' \neq b} \frac{2\Gamma_{bb'}}{\Gamma_{bb'}^2 + \delta_{bb'}^2} (R_{bb'}^2 (\rho_{bb} + \rho_{b'b'} - 2p_0) + S_{bb'}^2 (\rho_{b'b'} - \rho_{bb})). \end{aligned} \quad (2.54)$$

Ersetzen wir $\rho_{bb} - p_0$ durch $\bar{\rho}_{bb}$, so sehen wir, daß abgesehen vom spontanen Zerfall γ_b Rekombinationsprozesse mit isotroper Anfangsverteilung und Ionisationsprozesse (d.h. Prozesse mit $p_0 = 0$) durch äquivalente Gleichungssysteme beschrieben werden. Tatsächlich besteht für $\gamma_b = 0$ der einzige Unterschied in der Gleichgewichtsbesetzung in $|b\rangle$, die im Ionisationsprozeß verschwindet und im Rekombinationsprozeß gleich der Anfangsbesetzung p_0 bei $E_c = E_B$ ist. Allerdings müssen wir berücksichtigen, daß im allgemeinen verschiedene Anfangsbedingungen vorliegen. Nur wenn im Ionisationsprozeß $\rho_{bb}(t=0) = p_0$ für alle $|b\rangle$ gilt, ist die zeitliche Entwicklung von ρ_{bb} identisch mit der von $-(\rho_{bb} - p_0)$ im entsprechenden Rekombinationsprozeß.

Eine detailliertere Diskussion von (2.54) wird in Kap. 3.2 durchgeführt, wo wir laserinduzierte Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände diskutieren.

Kapitel 3

Laserinduzierte Rekombinationsprozesse

3.1 Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand

3.1.1 Allgemeine Theorie

Wir wenden jetzt diesen Formalismus auf spezielle Probleme im Zusammenhang mit laserinduzierter Elektron-Ion-Rekombination an. Der einfachste Spezialfall, den man sich vorstellen könnte, ist laserinduzierte Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand. In diesem Fall besteht unser System aus dem Kontinuum und einem diskreten Zustand $|b\rangle$ mit der Energie E_b , der durch das Laserfeld

$$E(t) = \epsilon e^{i\omega t} + \epsilon^* e^{-i\omega t} \quad (3.1)$$

mit $E_b + \omega > E_0$ an das Kontinuum gekoppelt ist (Abb. 3.1). Wie in Kap. 2 berücksichtigen wir spontanen Zerfall von $|b\rangle$ und den Kontinuumszuständen $|c\rangle$ mit den Raten γ_b bzw. γ_c .

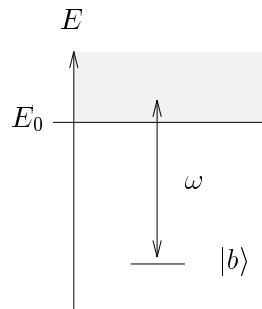


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des atomaren Systems

Die Kopplungsmatrixelemente des Hamiltonoperators lauten in der Dipol-Näherung

$$\langle b | H | c \rangle = H_{bc}(t) = \mu_{bc} E(t), \quad (3.2)$$

wobei $\mu_{bc} = \langle b | \mu | c \rangle$ das Dipolmatrixelement zwischen $|b\rangle$ und $|c\rangle$ ist. Unter Verwendung der „Rotating Wave Approximation“ (analog z.B. [12]) vereinfacht sich (3.2) zu

$$H_{bc}(t) = H_{bc} e^{i\omega t} \quad (3.3)$$

mit $H_{bc} = \mu_{bc} \epsilon$.

Um ein Dichtematrixgleichungssystem wie (2.10 – 2.12) mit zeitunabhängigen Kopplungsmatrixelementen zu erhalten, führen wir die langsam variierenden Komponenten der Dichtematrix ρ ein

$$\rho_{bb} := \langle b | \rho | b \rangle, \quad (3.4)$$

$$\rho_{cb} := \langle c | \rho | b \rangle e^{i\omega t}, \quad (3.5)$$

$$\rho_{cc'} := \langle c | \rho | c' \rangle, \quad (3.6)$$

die den Gleichungen

$$\frac{d}{dt} \rho_{bb} = -\gamma_b \rho_{bb} - i \int dc (H_{bc} \rho_{cb} - H_{bc}^* \rho_{cb}^*), \quad (3.7)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{cb} = & - \left(\frac{\gamma_c + \gamma_b}{2} + i(E_c - E_b - \omega) \right) \rho_{cb} \\ & - i H_{bc}^* \rho_{bb} + i \int dc' H_{bc'}^* \rho_{cc'}, \end{aligned} \quad (3.8)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{cc'} = - \left(\frac{\gamma_c + \gamma_{c'}}{2} + i(E_c - E_{c'}) \right) \rho_{cc'} + i(H_{bc'} \rho_{cb} - H_{bc'}^* \rho_{cb}^*) \quad (3.9)$$

mit der Anfangsbedingung

$$\rho_{cc'} = p_c \delta(c - c') \quad (3.10)$$

genügen. Führen wir $\bar{E}_b = E_b + \omega$ in (3.8) ein, so sehen wir, daß dieses Gleichungssystem einen Spezialfall von (2.10 – 2.12) darstellt.

Alternativ dazu können wir das System unter Verwendung von „Systemzuständen“ beschreiben: Wir definieren den Zustand

$$|\bar{b}\rangle := |b; n\rangle, \quad (3.11)$$

in dem das Atom im Zustand $|b\rangle$ ist und n Photonen im Lasermode vorliegen, und ganz analog den Zustand

$$|\bar{c}\rangle := |c; n-1\rangle. \quad (3.12)$$

Diese „Systemzustände“ haben die Energien $E_{\bar{b}} := E_b + n\omega$ bzw. $E_{\bar{c}} := E_c + (n-1)\omega$. Mit diesen Energien und mit $H_{\bar{b}\bar{c}} = \epsilon \mu_{bc}$ stimmen dann die Gleichungen für die Dichtematrixkomponenten genau mit (3.7 – 3.9) überein.

Unter der Annahme, daß H_{bc} und p_c hinreichend langsam mit E_c variieren, um die Pol-Approximation zu gewährleisten, können wir das Kontinuum eliminieren, wie es in Kap. 2.2 durchgeführt wurde, und erhalten

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = r - (\gamma_b + \Gamma)\rho_{bb}, \quad (3.13)$$

wobei

$$\Gamma := 2\pi \int dc |H_{bc}|^2 \delta(E_c - E_b - \omega), \quad (3.14)$$

$$r := 2\pi \int dc |H_{bc}|^2 p_c e^{-\gamma_c t} \delta(E_c - E_b - \omega). \quad (3.15)$$

Im Spezialfall zeitunabhängiger Laserfeld-Amplituden und für $\gamma_c = 0$ kann diese Gleichung exakt gelöst werden:

$$\rho_{bb}(t) = \frac{r}{\gamma_b + \Gamma} \left(1 - e^{-(\gamma_b + \Gamma)t}\right). \quad (3.16)$$

3.1.2 Vergleich mit einer genauen Rechnung

Um zu sehen, wie gut die Pol-Approximation (2.21 – 2.22) in diesem Spezialfall ist, vergleichen wir diese Lösung (3.16) mit [9], wo dieses Rekombinationsproblem für beliebige (d.h. nicht notwendig flache) Anfangsverteilungen im Spezialfall $\gamma_c = \gamma_b = 0$ diskutiert wird. Speziell bei der (in unseren Formalismus übersetzten) Anfangsverteilung

$$p_c \propto \frac{\gamma}{(E_c - E_b - \omega)^2 + \frac{\gamma^2}{4}} \quad (3.17)$$

wird folgende Rekombinationswahrscheinlichkeit angegeben:

$$\rho_{bb}(t) = \rho_0 \left[\frac{1 + e^{-\Gamma t}}{\Gamma \gamma (\Gamma + \gamma)} + 2 \left(\frac{e^{-\Gamma t}}{\Gamma (\Gamma + \gamma) (\Gamma - \gamma)} - \frac{e^{-\frac{\Gamma + \gamma}{2} t}}{\gamma (\Gamma + \gamma) (\Gamma - \gamma)} \right) \right]. \quad (3.18)$$

Im Grenzfall einer flachen Anfangsverteilung (also $\gamma \rightarrow \infty$) entspricht dies unserem Resultat (3.16):

$$\rho_{bb}(t) \xrightarrow{\Gamma/\gamma \rightarrow 0} \frac{\rho_0}{\Gamma \gamma^2} \left(1 - e^{-\Gamma t} + \mathcal{O}\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right)\right). \quad (3.19)$$

Damit sehen wir explizit, daß die Pol-Approximation in dem Kontinuum-Integral in (2.21), das p_c enthält, gut ist, solange die Ionisationsbreite Γ viel kleiner ist als der Energiebereich γ , in dem p_c beträchtlich variiert.

3.2 Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände

3.2.1 Allgemeine Theorie

Ein realistischeres Problem ist laserinduzierte Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände $|b\rangle$, die in der Nähe eines Energieniveaus $E_B < E_0$ liegen (Abb. 3.2), z.B. Rekombination in einen Unterraum wasserstoffähnlicher Zustände mit gleicher effektiver Hauptquantenzahl.

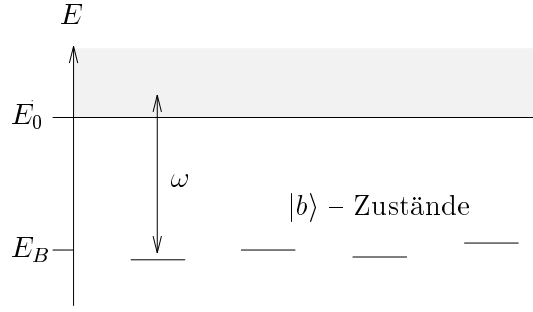


Abb. 3.2: Schematische Darstellung des atomaren Systems

Um den in Kap. 2 entwickelten Formalismus anzuwenden, betrachten wir wieder die Dynamik der langsam variierenden Komponenten der Dichtematrix oder verwenden, alternativ dazu, „Systemzustände“, wie das in Kap. 3.1 vorgeführt wurde. Mit $H_{bc} := \epsilon \mu_{bc}$, wobei ϵ die Laserfeld-Amplitude und μ_{bc} das Dipol-Matrixelement zwischen $|b\rangle$ und $|c\rangle$ ist, $\omega_{cb} := E_c - E_b - \omega$, wobei ω die Laserfrequenz ist, und $H_{bb} := 0$ können wir die Ergebnisse von Kap. 2 direkt übernehmen. Unter der Voraussetzung, daß die entsprechenden Näherungen hier gültig sind, erhält man nach der Elimination des Kontinuums die Dichtematrixgleichungen (2.30) mit ihren Korrekturen erster Ordnung (2.41) und nach der Ratengleichung-Näherung die Ratengleichungen (2.45). Im Spezialfall isotroper Anfangsverteilung und unter den an gleicher Stelle in Kap. 2.4 vorgenommenen Annahmen vereinfachen sich Dichtematrix- und Ratengleichungen zu (2.52 – 2.53) bzw. (2.54).

3.2.2 Rekombination in eine Gruppe wasserstoffähnlicher Zustände

Wir betrachten jetzt den Spezialfall der Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände mit gleicher effektiver Hauptquantenzahl n in einem wasserstoffähnlichen Atom oder Ion (oder allgemeiner: in einem Atom oder Ion bestehend aus einem Rumpf mit verschwindendem Drehimpuls und einem zusätzlichen Elektron) unter Verwendung linear polarisierter Laserstrahlung. In diesem Fall können wir die Zustände $|b\rangle$ dieser Gruppe durch die Quantenzahlen $|l, m, s\rangle$ repräsentieren. Da die Wechselwirkung mit linear polarisierter Laserstrahlung die magnetische Quantenzahl m und die Spinquantenzahl s nicht verändert, genügt es, $|b\rangle$ durch die Drehimpulsquantenzahl $|l\rangle$ innerhalb einer Untergruppe mit gleichem m und s zu parametrisieren und jede dieser Untergruppen getrennt zu behandeln. (Die Energien und die spontanen Zerfallsraten von $|l\rangle$ seien mit E_l bzw. γ_l bezeichnet.) Ebenso parametrisieren wir die Kontinuumszustände, an die die Zustände einer Untergruppe koppeln, durch $|c\rangle = |E, l\rangle$, wobei E die Energie und l die Drehimpulsquantenzahl von $|c\rangle$ bezeichnen. Die spontanen Zerfallsraten γ_c der Kontinuumszustände werden im folgenden vernachlässigt.

Definiert man

$$H_l^\pm(E) := \langle l | H | E, l \pm 1 \rangle \quad (3.20)$$

und

$$p_{ll'}(E) := \langle E, l | \rho(t=0) | E, l' \rangle \quad (3.21)$$

und führt man die Ersetzung

$$\int dc \dots \longrightarrow \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \int_{E_0}^{\infty} dE_c D(E_c) \dots \quad (3.22)$$

durch, wobei $D(E)$ die Dichte der Kontinuumszustände ist, so erhält man für (2.23 – 2.26)

$$\Gamma_l = 2\pi D(E_l + \omega) \left(|H_l^+(E_l + \omega)|^2 + |H_l^-(E_l + \omega)|^2 \right), \quad (3.23)$$

$$\delta_l = \mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{|H_l^+(E)|^2 + |H_l^-(E)|^2}{E - E_l - \omega} D(E) dE, \quad (3.24)$$

$$\begin{aligned} i\Omega_{l,l\pm 2} &= \pi D(E_{l\pm 2} + \omega) H_l^\pm(E_{l\pm 2} + \omega) \left(H_{l\pm 2}^\mp(E_{l\pm 2} + \omega) \right)^* \\ &\quad - i\mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{H_l^\pm(E) \left(H_{l\pm 2}^\mp(E) \right)^*}{E - E_{l\pm 2} - \omega} D(E) dE, \end{aligned} \quad (3.25)$$

$$\begin{aligned} r_{ll'} &= \int_{E_0}^{\infty} dE D(E) \left(\pi (\delta(E - E_l - \omega) + \delta(E - E_{l'} - \omega)) \right. \\ &\quad \left. + i\mathcal{P} \left(\frac{1}{E - E_l - \omega} - \frac{1}{E - E_{l'} - \omega} \right) \right) \\ &\quad \times \left(H_l^+(E) \left(H_{l'}^+(E) \right)^* p_{l+1,l'+1}(E) + H_l^-(E) \left(H_{l'}^+(E) \right)^* p_{l-1,l'+1}(E) \right. \\ &\quad \left. + H_l^+(E) \left(H_{l'}^-(E) \right)^* p_{l+1,l'-1}(E) + H_l^-(E) \left(H_{l'}^-(E) \right)^* p_{l-1,l'-1}(E) \right) \end{aligned} \quad (3.26)$$

(Man beachte, daß aufgrund der Paritäts- und Dipol-Auswahlregeln Kopplungen über das Kontinuum nur zwischen $|l\rangle$ und $|l \pm 2\rangle$ auftreten.)

Für die Dichtematrixgleichungen (2.30) erhält man

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{ll'} &= r_{ll'} - (\Gamma_{ll'} + i\delta_{ll'}) \rho_{ll'} \\ &\quad - i\Omega_{l,l+2} \rho_{l+2,l'} - i\Omega_{l,l-2} \rho_{l-2,l'} \\ &\quad - (i\Omega_{l',l'+2})^* \rho_{l,l'+2} - (i\Omega_{l',l'-2})^* \rho_{l,l'-2}, \end{aligned} \quad (3.27)$$

wobei

$$\Gamma_{ll'} := \frac{\gamma_l + \gamma_{l'} + \Gamma_l + \Gamma_{l'}}{2}, \quad (3.28)$$

$$\delta_{ll'} := E_l - E_{l'} - \delta_l + \delta_{l'}, \quad (3.29)$$

und für die Ratengleichungen (2.45)

$$\frac{d}{dt} \rho_{ll} = -(\gamma_l + \Gamma_l) \rho_{ll} + \left(\frac{i\Omega_{l,l+2} i\Omega_{l+2,l}}{\Gamma_{l,l+2} - i\delta_{l,l+2}} + \frac{i\Omega_{l,l-2} i\Omega_{l-2,l}}{\Gamma_{l,l-2} - i\delta_{l,l-2}} + \text{c.c.} \right) \rho_{ll}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{2\Gamma_{l,l+2} |\mathbf{i}\Omega_{l,l+2}|^2}{\Gamma_{l,l+2}^2 + \delta_{l,l+2}^2} \rho_{l+2,l+2} + \frac{2\Gamma_{l,l-2} |\mathbf{i}\Omega_{l,l-2}|^2}{\Gamma_{l,l-2}^2 + \delta_{l,l-2}^2} \rho_{l-2,l-2} \\
& + r_{ll} - \left(\frac{\mathbf{i}\Omega_{l,l+2} r_{l+2,l}}{\Gamma_{l,l+2} - \mathbf{i}\delta_{l,l+2}} + \frac{\mathbf{i}\Omega_{l,l-2} r_{l-2,l}}{\Gamma_{l,l-2} - \mathbf{i}\delta_{l,l-2}} + \text{c.c.} \right). \quad (3.30)
\end{aligned}$$

Im Spezialfall isotroper Anfangsverteilung und unter den an gleicher Stelle in Kap. 2.4 vorgenommenen Annahmen vereinfachen sich (3.23 – 3.26) zu

$$\delta_l = \mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{(H_l^+(E))^2 + (H_l^-(E))^2}{E - E_B - \omega} D(E) dE, \quad (3.31)$$

$$\mathbf{i}\Omega_{l,l\pm 2} = R_{l,l\pm 2} - \mathbf{i} S_{l,l\pm 2}, \quad (3.32)$$

$$r_{ll} = p_0 \Gamma_l, \quad (3.33)$$

$$r_{l,l\pm 2} = 2p_0 R_{l,l\pm 2}, \quad (3.34)$$

$$\Gamma_l = \Gamma_l^+ + \Gamma_l^-, \quad (3.35)$$

wobei

$$R_{l,l\pm 2} := \frac{1}{2} \sqrt{\Gamma_l^{\pm} \Gamma_{l\pm 2}^{\mp}}, \quad (3.36)$$

$$S_{l,l\pm 2} := \mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{H_l^{\pm}(E) H_{l\pm 2}^{\mp}(E)}{E - E_B - \omega} D(E) dE, \quad (3.37)$$

$$\Gamma_l^{\pm} := 2\pi D(E_B + \omega) (H_l^{\pm}(E_B + \omega))^2, \quad (3.38)$$

$$p_0 := p(E_B + \omega), \quad (3.39)$$

sofern wir die Phasen der Wellenfunktionen der beteiligten Zustände so wählen, daß $H_l^{\pm}(E_B + \omega)$ positiv ist für alle l . Damit lauten die Dichtematrixgleichungen

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \bar{\rho}_{ll'} &= -\frac{\gamma_l + \gamma_{l'}}{2} \rho_{ll'} - \left(\frac{\Gamma_l + \Gamma_{l'}}{2} + \mathbf{i}\delta_{ll'} \right) \bar{\rho}_{ll'} \\
&- (R_{l,l+2} - \mathbf{i} S_{l,l+2}) \bar{\rho}_{l+2,l'} - (R_{l,l-2} - \mathbf{i} S_{l,l-2}) \bar{\rho}_{l-2,l'} \\
&- (R_{l',l'+2} + \mathbf{i} S_{l',l'+2}) \bar{\rho}_{l,l'+2} - (R_{l',l'-2} + \mathbf{i} S_{l',l'-2}) \bar{\rho}_{l,l'-2} \quad (3.40)
\end{aligned}$$

mit $\bar{\rho}_{ll'} := \rho_{ll'}$ für $l' \neq l$ und $\bar{\rho}_{ll} := \rho_{ll} - p_0$. Die Ratengleichungen lauten

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \sigma_l &= -\gamma_l \rho_{ll} - (\Gamma_l^+ - A_l) \sigma_l + B_l (\sigma_l + \sigma_{l+2}) + C_l (\sigma_{l+2} - \sigma_l) \\
&- (\Gamma_l^- + A_{l-2}) \sigma_l + B_{l-2} (\sigma_l + \sigma_{l-2}) + C_{l-2} (\sigma_{l-2} - \sigma_l), \quad (3.41)
\end{aligned}$$

wobei $\sigma_l := \rho_{ll} - p_0$ und

$$A_l := \frac{2\delta_{l,l+2} S_{l,l+2} \sqrt{\Gamma_l^+ \Gamma_{l+2}^-}}{\Gamma_{l,l+2}^2 + \delta_{l,l+2}^2}, \quad (3.42)$$

$$B_l := \frac{\frac{1}{2} \Gamma_{l,l+2} \Gamma_l^+ \Gamma_{l+2}^-}{\Gamma_{l,l+2}^2 + \delta_{l,l+2}^2}, \quad (3.43)$$

$$C_l := \frac{2\Gamma_{l,l+2} S_{l,l+2}^2}{\Gamma_{l,l+2}^2 + \delta_{l,l+2}^2}. \quad (3.44)$$

Um einen kleinen Einblick in die physikalische Bedeutung der Kopplungskonstanten A_l , B_l und C_l zu gewinnen, betrachten wir die Dynamik zwischen den Besetzungen in $|l\rangle$ und $|l+2\rangle$ separat. Ohne spontanen Zerfall und isoliert von allen anderen Zuständen lautet der Anteil der Ratengleichungen, der die Wechselwirkung zwischen σ_l und σ_{l+2} beschreibt,

$$\frac{d}{dt}\sigma_l = -\Gamma_l^+ \sigma_l + A_l \sigma_l + B_l (\sigma_l + \sigma_{l+2}) + C_l (\sigma_{l+2} - \sigma_l), \quad (3.45)$$

$$\frac{d}{dt}\sigma_{l+2} = -\Gamma_{l+2}^- \sigma_{l+2} - A_l \sigma_{l+2} + B_l (\sigma_l + \sigma_{l+2}) + C_l (\sigma_l - \sigma_{l+2}). \quad (3.46)$$

Wir sehen, daß B_l einen Beitrag zum Zerfall von $\sigma_l + \sigma_{l+2}$, der Abweichung der Gesamtbesetzung von ihrem Maximalwert, liefert, während C_l einen Besetzungstransfer zwischen $|l\rangle$ und $|l+2\rangle$ verursacht mit der Tendenz, die Besetzungen in beiden Zuständen anzugleichen. Dies erscheint plausibel, da C_l nur den Imaginärteil von $i\Omega_{l,l+2}$, also den hermiteschen Anteil der Kopplung, und B_l nur den Realteil von $i\Omega_{l,l+2}$, also den nichthermiteschen Anteil der Kopplung, enthält.

Inwieweit A_l zum Zerfall von $\sigma_l + \sigma_{l+2}$ oder zum Besetzungstransfer zwischen $|l\rangle$ und $|l+2\rangle$ beiträgt, hängt ab von den momentanen Besetzungen in $|l\rangle$ und $|l+2\rangle$. Falls $\sigma_l \approx \sigma_{l+2}$, verursacht A_l einen Besetzungstransfer vom niedrigeren zum höheren Niveau für $S_{l,l+2} > 0$ (und in umgekehrter Richtung für $S_{l,l+2} < 0$). Falls andererseits $\sigma_l \gg \sigma_{l+2}$, verursacht A_l praktisch nur eine Modifikation des Zerfalls von σ_l und beeinflusst damit sowohl $\sigma_l + \sigma_{l+2}$ als auch $\sigma_l - \sigma_{l+2}$.

Ob und inwieweit Besetzungstransfer über das Kontinuum stattfindet, hängt letzten Endes von den Zerfallsraten Γ_l^+ und Γ_{l+2}^- ab. Im Extremfall $\Gamma_l^+ = \Gamma_{l+2}^-$ und $\delta_{l,l+2} = 0$ zerfallen σ_l und σ_{l+2} gleich schnell und sind daher stets gleich groß, weshalb kein Besetzungstransfer auftritt. Ist jedoch $\Gamma_l^+ > \Gamma_{l+2}^-$, so bewirkt der aus dem durch den Unterschied der Zerfallsraten verursachte Unterschied der Besetzungen resultierende Besetzungstransfer von $|l\rangle$ nach $|l+2\rangle$ eine effektive Erhöhung der Zerfallsrate von $\sigma_l + \sigma_{l+2}$.

Um diesen Effekt zu demonstrieren, integrieren wir (3.45 – 3.46) im Extremfall $\Gamma_{l+2}^- = 0$. Da hier $A_l = B_l = 0$ gilt, erhalten wir für (3.45 – 3.46) einfach

$$\frac{d}{dt}\sigma_l = -(\Gamma_l^+ + C_l) \sigma_l + C_l \sigma_{l+2}, \quad (3.47)$$

$$\frac{d}{dt}\sigma_{l+2} = -C_l \sigma_{l+2} + C_l \sigma_l. \quad (3.48)$$

Mit der Anfangsbedingung $\sigma_l(t=0) = \sigma_{l+2}(t=0) = -p_0$ ergibt sich die gesamte rekombinierte Besetzung zu

$$\begin{aligned} \rho_l + \rho_{l+2} = 2p_0 & \left[1 - e^{-(\frac{1}{2}\Gamma_l^+ + C_l)t} \left(\cosh \sqrt{\left(\frac{1}{2}\Gamma_l^+\right)^2 + C_l^2} t \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{C_l}{\sqrt{\left(\frac{1}{2}\Gamma_l^+\right)^2 + C_l^2}} \sinh \sqrt{\left(\frac{1}{2}\Gamma_l^+\right)^2 + C_l^2} t \right) \right]. \end{aligned} \quad (3.49)$$

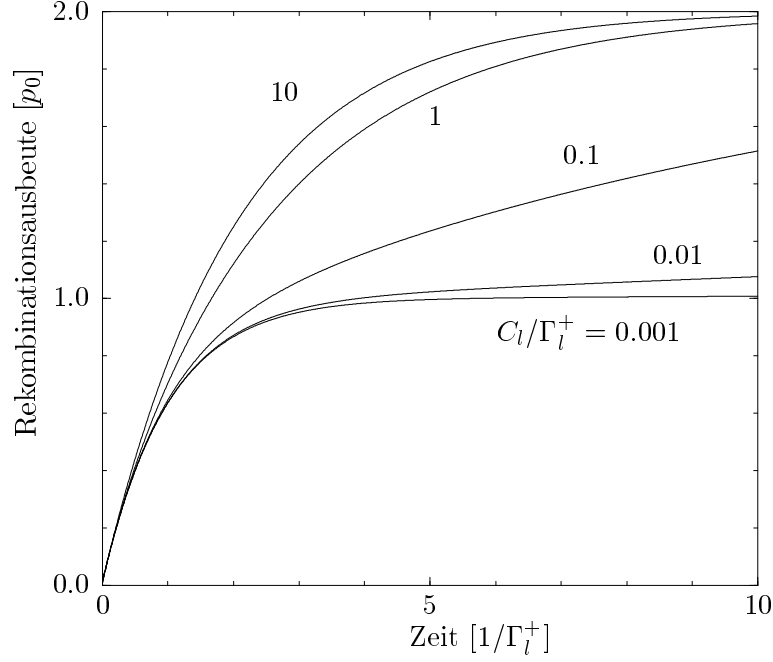


Abb. 3.3: Zeitentwicklung der gesamten rekombinierten Besetzung $\rho_l + \rho_{l+2}$ gemäß (3.49) für verschiedene Werte von C_l/Γ_l^+

Aus Abb. 3.3, in der der zeitliche Verlauf von $\rho_l + \rho_{l+2}$ für verschiedene Werte von C_l dargestellt ist, sehen wir, daß die gesamte rekombinierte Besetzung desto schneller gegen $2p_0$ konvergiert, je größer C_l ist, d.h. je intensiver Besetzung von $|l\rangle$ nach $|l+2\rangle$ transferiert wird.

Natürlich ist es im Prinzip nicht möglich, aus der Diskussion dieses vereinfachten Teilsystems Schlußfolgerungen zu ziehen, die das gesamte System betreffen. Doch es deutet sich hier an, daß bei Vorliegen zweier Zustände mit stark unterschiedlichen Zerfallsraten der hermitesche Anteil der Kopplung über das Kontinuum zwischen diesen Zuständen eine nicht unwesentliche Erhöhung der gesamten Rekombinationsausbeute bewirken könnte.

3.3 Laserinduzierte Zweistufenrekombination

3.3.1 Allgemeine Theorie

Wir wenden unseren Formalismus jetzt auf laserinduzierte Zweistufenrekombination an, das sich als nützliches Verfahren zur Vermessung von Rydbergzuständen hochgeladener Ionen erwiesen hat [6, 7, 8]. Wir betrachten ein atomares System bestehend aus einer Gruppe von Zuständen $|\alpha\rangle$ in der Nähe der Energie E_A , einer zweiten Gruppe von Zuständen $|\beta\rangle$

in der Nähe der Energie $E_B > E_A$ und einem Kontinuum von Zuständen $|c\rangle$ oberhalb der Schwellenergie $E_0 > E_B$, wie in Abb. 3.4 gezeigt wird. Dieses System wechselwirkt mit einem Laserfeld

$$E_1(t) = \epsilon_1 e^{i\omega_1 t} + \epsilon_1^* e^{-i\omega_1 t}, \quad (3.50)$$

das die obere Gruppe an das Kontinuum koppelt ($\omega_1 > E_0 - E_B$), und einem zweiten Laserfeld

$$E_2(t) = \epsilon_2 e^{i\omega_2 t} + \epsilon_2^* e^{-i\omega_2 t}, \quad (3.51)$$

das die untere an die obere Gruppe koppelt ($\omega_2 \approx E_B - E_A$). Wie üblich berücksichtigen wir spontanen Zerfall von den $|\beta\rangle$ - und den $|\alpha\rangle$ -Zuständen und vernachlässigen den Beitrag spontaner Übergänge innerhalb des Niveauschemas (z.B. von $|\beta\rangle$ nach $|\alpha\rangle$).

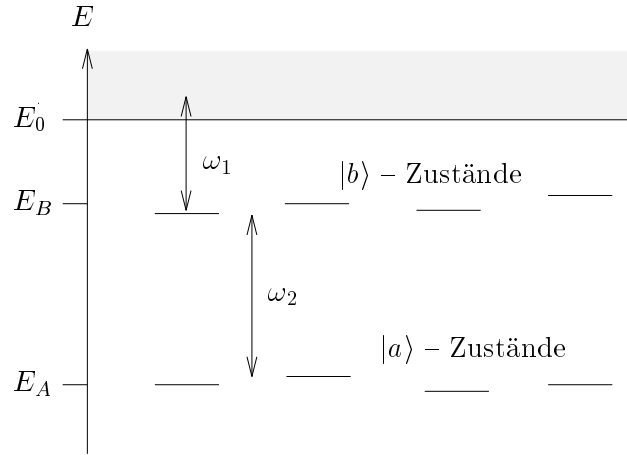


Abb. 3.4: Schematische Darstellung des atomaren Systems

Unter Verwendung der Dipol-Näherung und der “Rotating Wave Approximation” lauten die Außerdiagonalelemente des effektiven Hamiltonoperators

$$\langle \beta | H | c \rangle := M_{\beta c} e^{i\omega_1 t}, \quad (3.52)$$

$$\langle \alpha | H | \beta \rangle := M_{\alpha \beta} e^{i\omega_2 t}, \quad (3.53)$$

wobei

$$M_{\alpha \beta} := \epsilon_2 \cdot \langle \alpha | \mu | \beta \rangle, \quad (3.54)$$

$$M_{\beta c} := \epsilon_1 \cdot \langle \beta | \mu | c \rangle \quad (3.55)$$

und μ der Dipol-Operator ist.

Um ein Dichtematrixgleichungssystem wie (2.10 – 2.12) mit zeitunabhängigen Kopplungsmatrixelementen zu erhalten, führen wir die langsam variierenden Komponenten der Dichte-

matrix ρ ein, die durch

$$\rho_{\alpha\alpha'} := \langle \alpha | \rho | \alpha' \rangle, \quad (3.56)$$

$$\rho_{\beta\beta'} := \langle \beta | \rho | \beta' \rangle, \quad (3.57)$$

$$\rho_{cc'} := \langle c | \rho | c' \rangle, \quad (3.58)$$

$$\rho_{\beta\alpha} := \langle \beta | \rho | \alpha \rangle e^{i\omega_2 t}, \quad (3.59)$$

$$\rho_{c\beta} := \langle c | \rho | \beta \rangle e^{i\omega_1 t}, \quad (3.60)$$

$$\rho_{c\alpha} := \langle c | \rho | \alpha \rangle e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} \quad (3.61)$$

definiert sind. Für diese Komponenten erhalten wir ein Gleichungssystem, das den Dichtematrixgleichungen (2.10 – 2.12) entspricht, wobei $|b\rangle$ hier entweder einen Zustand $|\beta\rangle$ der oberen Gruppe, der an das Kontinuum und an Zustände der unteren Gruppe gekoppelt ist, oder einen Zustand $|\alpha\rangle$ der unteren Gruppe, der nur an Zustände der oberen Gruppe gekoppelt ist, repräsentiert. Im einzelnen erhalten wir die Gleichungen

$$\frac{d}{dt}\rho_{\alpha\alpha'} = -(\gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'})\rho_{\alpha\alpha'} - i \sum_{\beta} (M_{\alpha\beta} \rho_{\beta\alpha'} - M_{\alpha'\beta}^* \rho_{\beta\alpha}^*), \quad (3.62)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{\beta\alpha} &= -(\gamma_{\beta\alpha} + i\Delta_{\beta\alpha})\rho_{\beta\alpha} - i \sum_{\alpha'} M_{\alpha'\beta}^* \rho_{\alpha'\alpha} \\ &\quad + i \sum_{\beta'} M_{\alpha\beta'}^* \rho_{\beta\beta'} - i \int dc M_{\beta c} \rho_{c\alpha}, \end{aligned} \quad (3.63)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{\beta\beta'} &= -(\gamma_{\beta\beta'} + i\omega_{\beta\beta'})\rho_{\beta\beta'} - i \sum_{\alpha} (M_{\alpha\beta}^* \rho_{\beta'\alpha}^* - M_{\alpha\beta'} \rho_{\beta\alpha}) \\ &\quad - i \int dc (M_{\beta c} \rho_{c\beta'} - M_{\beta'c}^* \rho_{c\beta}^*), \end{aligned} \quad (3.64)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{c\alpha} = -(\gamma_{c\alpha} + i\Delta_{c\alpha})\rho_{c\alpha} - i \sum_{\beta} M_{\beta c}^* \rho_{\beta\alpha} + i \sum_{\beta} M_{\alpha\beta}^* \rho_{c\beta}, \quad (3.65)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{c\beta} &= -(\gamma_{c\beta} + i\Delta_{c\beta})\rho_{c\beta} - i \sum_{\beta'} M_{\beta'c}^* \rho_{\beta'\beta} \\ &\quad + i \sum_{\alpha} M_{\alpha\beta} \rho_{c\alpha} + i \int dc' M_{\beta c'}^* \rho_{cc'}, \end{aligned} \quad (3.66)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{cc'} = -(\gamma_{cc'} + i\omega_{cc'})\rho_{cc'} - i \sum_{\beta} (M_{\beta c}^* \rho_{c'\beta}^* - M_{\beta c'} \rho_{c\beta}) \quad (3.67)$$

mit der Anfangsbedingung

$$\rho_{cc'}(t=0) = p_c \delta(c - c'), \quad (3.68)$$

wobei

$$\gamma_{ij} := \frac{1}{2}(\gamma_i + \gamma_j), \quad (3.69)$$

$$\omega_{ij} := E_i - E_j \quad (3.70)$$

für alle $i, j = \alpha, \beta, c$ und

$$\Delta_{\beta\alpha} := E_\beta - E_\alpha - \omega_2, \quad (3.71)$$

$$\Delta_{c\beta} := E_c - E_\beta - \omega_1, \quad (3.72)$$

$$\Delta_{c\alpha} := E_c - E_\alpha - \omega_1 - \omega_2 \quad (3.73)$$

für alle α, β, c sind. Wie immer bezeichnen E_i und γ_i die Energien bzw. die spontanen Zerfallsraten der Zustände $|i\rangle$.

Alternativ dazu können wir die „Systemzustände“

$$|\bar{\alpha}\rangle := |\alpha, n, m\rangle, \quad (3.74)$$

$$|\bar{\beta}\rangle := |\beta, n, m-1\rangle, \quad (3.75)$$

$$|\bar{c}\rangle := |c, n-1, m-1\rangle \quad (3.76)$$

definieren, wobei $|i, n, m\rangle$ den Produktzustand bezeichnet, in dem das Atom im Zustand $|i\rangle$, n Photonen im Lasermode von Laser 1 und m Photonen im Lasermode von Laser 2 sind. Mit $\langle\bar{\alpha}|H|\bar{\beta}\rangle = M_{\alpha\beta}$ und $\langle\bar{\beta}|H|\bar{c}\rangle = M_{\beta c}$ stimmen die Gleichungen für die Komponenten von ρ bezüglich dieser Basis genau überein mit (3.62 – 3.67).

Unter der Annahme, daß $M_{\beta c}$ und p_c in der Nähe von $E_c = E_B + \omega_1$ hinreichend langsam mit E_c variieren, um die Näherungen (2.18 – 2.19) und (2.21 – 2.22) zu gewährleisten, können wir das Kontinuum gemäß Kap. 2.2 eliminieren und erhalten die Dichtematrixgleichungen

$$\frac{d}{dt}\rho_{\alpha\alpha'} = -(\gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'})\rho_{\alpha\alpha'} - i\sum_{\beta}(M_{\alpha\beta}\rho_{\beta\alpha'} - M_{\alpha'\beta}^*\rho_{\beta\alpha}^*), \quad (3.77)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{\beta\alpha} &= -(\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha})\rho_{\beta\alpha} - \sum_{\beta' \neq \beta} i\Omega_{\beta\beta'}\rho_{\beta'\alpha} \\ &\quad + i\sum_{\beta'} M_{\alpha\beta'}^*\rho_{\beta\beta'} - i\sum_{\alpha'} M_{\alpha'\beta}^*\rho_{\alpha'\alpha}, \end{aligned} \quad (3.78)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{\beta\beta'} &= -(\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'})\rho_{\beta\beta'} - \sum_{\beta'' \neq \beta} i\Omega_{\beta\beta''}\rho_{\beta''\beta'} \\ &\quad - \sum_{\beta'' \neq \beta'} (i\Omega_{\beta'\beta''})^*\rho_{\beta\beta''} - i\sum_{\alpha}(M_{\alpha\beta}^*\rho_{\beta'\alpha}^* - M_{\alpha\beta'}\rho_{\beta\alpha}) \\ &\quad + r_{\beta\beta'}, \end{aligned} \quad (3.79)$$

wobei

$$\Gamma_{\beta\beta'} := \gamma_{\beta\beta'} + \frac{1}{2}(\Gamma_\beta + \Gamma_{\beta'}), \quad (3.80)$$

$$\Gamma_{\beta\alpha} := \gamma_{\beta\alpha} + \frac{1}{2}\Gamma_\beta, \quad (3.81)$$

$$\delta_{\beta\beta'} := \omega_{\beta\beta'} - \delta_\beta + \delta_{\beta'}, \quad (3.82)$$

$$\delta_{\beta\alpha} := \Delta_{\beta\alpha} - \delta_\beta \quad (3.83)$$

und

$$\Gamma_\beta := 2\pi \int dc |M_{\beta c}|^2 \delta(\Delta_{c\beta}), \quad (3.84)$$

$$\delta_\beta := \mathcal{P} \int dc \frac{|M_{\beta c}|^2}{\Delta_{c\beta}}, \quad (3.85)$$

$$i\Omega_{\beta\beta'} := \pi \int dc M_{\beta c} M_{\beta'c}^* \delta(\Delta_{c\beta'}) - i\mathcal{P} \int dc \frac{M_{\beta c} M_{\beta'c}^*}{\Delta_{c\beta'}}, \quad (3.86)$$

$$\begin{aligned} r_{\beta\beta'} := & \pi \int dc M_{\beta c} M_{\beta'c}^* p_c e^{-\gamma c t} (\delta(\Delta_{c\beta}) + \delta(\Delta_{c\beta'})) \\ & + i\mathcal{P} \int dc M_{\beta c} M_{\beta'c}^* p_c e^{-\gamma c t} \left(\frac{1}{\Delta_{c\beta}} - \frac{1}{\Delta_{c\beta'}} \right). \end{aligned} \quad (3.87)$$

Korrekturen höherer Ordnung von (3.77 – 3.79) können gemäß Kap. 2.3 berechnet werden. Sofern $H_{\beta c}$ so gering mit E_c variiert, daß wir in (2.41) nur Terme, die $\frac{\partial}{\partial E_c} p_c$ enthalten, berücksichtigen müssen, lauten die Korrekturen erster Ordnung von (3.77 – 3.79)

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{\beta\beta'} \right)' \approx \frac{d}{dt} \rho_{\beta\beta'} + r'_{\beta\beta'}, \quad (3.88)$$

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{\beta\alpha} \right)' \approx \frac{d}{dt} \rho_{\beta\alpha} + r'_{\beta\alpha}, \quad (3.89)$$

wobei

$$\begin{aligned} r'_{\beta\beta'} = & \sum_{\beta'' \neq \beta'} \Omega_{\beta'\beta''}^* \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) - i\mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} (p_c e^{-\gamma c t} M_{\beta c} M_{\beta''c}^*) \\ & - \sum_{\beta'' \neq \beta} \Omega_{\beta\beta''} \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) + i\mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} (p_c e^{-\gamma c t} M_{\beta'c} M_{\beta''c}^*), \end{aligned} \quad (3.90)$$

$$r'_{\beta\alpha} = \sum_{\beta'} M_{\alpha\beta'}^* \int dc \left(\pi \delta(\omega_{cB}) - i\mathcal{P} \frac{1}{\omega_{cB}} \right) \frac{\partial}{\partial E_c} (p_c e^{-\gamma c t} M_{\beta c} M_{\beta'c}^*). \quad (3.91)$$

Falls

$$|i\Omega_{\beta\beta'}| \ll |\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'}|, |\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha}| \quad (3.92)$$

und

$$|M_{\alpha\beta}| \ll |\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha}|, |\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'}|, |\gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'}| \quad (3.93)$$

gilt, können wir die Ratengleichung-Näherung gemäß Kap. 2.4 durchführen und erhalten die Ratengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{\beta\beta} = & -(\gamma_\beta + \Gamma_\beta) \rho_{\beta\beta} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} i\Omega_{\beta'\beta}}{\Gamma_{\beta\beta'} - i\delta_{\beta\beta'}} + \text{c.c.} \right) \rho_{\beta\beta} \\ & + \sum_{\beta' \neq \beta} |i\Omega_{\beta\beta'}|^2 \frac{2\Gamma_{\beta\beta'}}{\Gamma_{\beta\beta'}^2 + \delta_{\beta\beta'}^2} \rho_{\beta'\beta'} \\ & + \sum_{\alpha} |M_{\alpha\beta}|^2 \frac{2\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \delta_{\beta\alpha}^2} (\rho_{\alpha\alpha} - \rho_{\beta\beta}) \end{aligned}$$

$$+ r_{\beta\beta} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} r_{\beta'\beta}}{\Gamma_{\beta\beta'} - i\delta_{\beta\beta'}} + \text{c.c.} \right), \quad (3.94)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{\alpha\alpha} = -\gamma_{\alpha}\rho_{\alpha\alpha} + \sum_{\beta} |M_{\alpha\beta}|^2 \frac{2\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \delta_{\beta\alpha}^2} (\rho_{\beta\beta} - \rho_{\alpha\alpha}). \quad (3.95)$$

Wir sehen, daß die Dichtematrixgleichungen (3.77 – 3.79) und die Ratengleichungen (3.94 – 3.95) zwei verschiedene Arten von Kopplungen enthalten: die von Laser 1 induzierten Ω -Kopplungen zwischen $|\beta\rangle$ und $|\beta'\rangle$ über das Kontinuum, die auch in der Einstufenrekombination in eine Gruppe gebundener Zustände auftreten und in Kap. 3.2.2 diskutiert wurden, und die von Laser 2 induzierten Kopplungen zwischen $|\beta\rangle$ und $|\alpha\rangle$, die durch die Elimination des Kontinuums nicht geändert wurden.

In einem realistischen Spektroskopieexperiment (z.B. [6]) wird die gesamte Rekombinationsausbeute als Funktion der Frequenz von Laser 2 zu gemessen, um Übergänge zwischen Zuständen der oberen und der unteren Gruppe aufzulösen. Für die Berechnung der Form des bei diesem Experiment zu erwartenden Rekombinationsspektrums sollten die Kopplungen zwischen Zuständen der oberen Gruppe über das Kontinuum, deren Einfluß auf die Rekombinationsausbeute in erster Näherung unabhängig ist von der Frequenz von Laser 2, eine geringe, wenn nicht vernachlässigbare Rolle spielen. Daher sollte es prinzipiell möglich sein, die Form des Rekombinationsspektrums mit Hilfe des vereinfachten Ratengleichungssystems

$$\frac{d}{dt}\rho_{\beta\beta} = -(\gamma_{\beta} + \Gamma_{\beta})\rho_{\beta\beta} + \sum_{\alpha} |M_{\alpha\beta}|^2 \frac{2\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \delta_{\beta\alpha}^2} (\rho_{\alpha\alpha} - \rho_{\beta\beta}) + r_{\beta\beta}, \quad (3.96)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{\alpha\alpha} = -\gamma_{\alpha}\rho_{\alpha\alpha} + \sum_{\beta} |M_{\alpha\beta}|^2 \frac{2\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \delta_{\beta\alpha}^2} (\rho_{\beta\beta} - \rho_{\alpha\alpha}) \quad (3.97)$$

zu berechnen, das (3.94 – 3.95) ohne Kopplungen über das Kontinuum (bzw. mit $\Omega_{\beta\beta'} = 0$) ist und das formal jenem Gleichungssystem entspricht, das man sich intuitiv für diesen Prozeß überlegen würde: ein Gleichungssystem, das spontanen Zerfall ($\gamma_{\alpha}, \gamma_{\beta}$) von allen Zuständen, induzierten Zerfall (Γ_{β}) von den Zustände der oberen Gruppe, eine Rate ($r_{\beta\beta}$), mit der die oberen Zustände bevölkert werden, und eine Rate, mit der die Besetzung von der oberen in die untere Gruppe überführt wird und die mit zunehmender Laserverstimmung kleiner wird, berücksichtigt. Wie gut (3.96 – 3.97) das Spektrum eines Zweistufenexperiments reproduzieren kann, wird in Kap. 5 untersucht.

3.3.2 Berücksichtigung der Laserlinienbreite

Bis jetzt haben wir monochromatische Laserstrahlung angenommen. Jeder realistische Laser weist jedoch eine nichtverschwindende Bandbreite auf, die in eine quantitative Beschreibung eines Zweistufenrekombinationsexperiments miteinzubeziehen ist. Realistischer ist daher die Annahme einer Linienform, die in Resonanznähe einer Lorentzkurve entspricht und für Frequenzen weit außerhalb der Resonanz stärker als eine Lorentzkurve abfällt. (Man beachte,

daß eine rein lorentzartige Linienform zu unphysikalisch hoher Besetzung von Zuständen weit außerhalb der Resonanz führt.) Nach [13] kann eine derartige Linienform vom Phasendifusionsmodell eines idealen Ein-Moden-Lasers vorhergesagt werden und führt zu folgender Modifikation der Zerfallsraten der Außerdiagonaldichtematrixelemente $\rho_{c\beta}$ und $\rho_{\beta\alpha}$:

$$\gamma_{c\beta} \longrightarrow \gamma_{c\beta} + b_1 \cdot \frac{\beta_1^2}{\Delta_{c\beta}^2 + \beta_1^2}, \quad (3.98)$$

$$\gamma_{\beta\alpha} \longrightarrow \gamma_{\beta\alpha} + b_2 \cdot \frac{\beta_2^2}{\Delta_{\beta\alpha}^2 + \beta_2^2}. \quad (3.99)$$

Dabei sind $2b_1$ und $2b_2$ die Linienbreiten (FWHM) der Laser 1 bzw. 2. $\beta_1 \gg b_1$ und $\beta_2 \gg b_2$ sind Abschneidefrequenzen, oberhalb derer die Linienformen stärker als Lorentzkurven abfallen. Während die Änderung (3.98) die Dichtematrixgleichungen (3.77 – 3.79) nicht beeinflusst (natürlich unter der Annahme, daß die Gültigkeit der Pol-Approximation durch (3.98) nicht beeinträchtigt wird), muß (3.99) (bzw. die entsprechende Modifikation von $\Gamma_{\beta\alpha}$) in den Dichtematrixgleichungen (3.77 – 3.79) bzw. in den Ratengleichungen (3.94 – 3.95) berücksichtigt werden.

3.3.3 Variante der Ratengleichung-Näherung

Mit dieser Modifikation ist es im Prinzip möglich, daß

$$|M_{\alpha\beta}|, |i\Omega_{\beta\beta'}| \ll |\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha}| \quad (3.100)$$

und zugleich

$$|M_{\alpha\beta}| \text{ oder } |i\Omega_{\beta\beta'}| \approx |\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'}|, |\gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'}| \quad (3.101)$$

gilt, z.B. wenn b größer als sämtliche Zerfallsraten γ_i , Γ_β und Oszillationskonstanten $\omega_{\alpha\alpha'}$, δ_{ij} ist, die ihrerseits unterhalb oder in der Größenordnung der Kopplungskonstanten $M_{\alpha\beta}$, $\Omega_{\beta\beta'}$ liegen. In diesem Fall ist die direkte Elimination der Außerdiagonaldichtematrixelemente, wie sie in Kap. 2.4 vorgeführt wurde, nicht gerechtfertigt. Lediglich $\rho_{\beta\alpha}$ kann eliminiert werden, indem man (3.78) unter Vernachlässigung der Kopplung an $\rho_{\beta'\alpha}$ und unter Berücksichtigung der oszillierenden Anteile der unter dem Integral verbleibenden Dichtematrixelemente $\rho_{\beta\beta'}$ und $\rho_{\alpha\alpha'}$ analog (2.43 – 2.44) integriert. Man erhält damit

$$\rho_{\beta\alpha} = \sum_{\alpha'} \frac{-iM_{\alpha'\beta}^* \rho_{\alpha\alpha'}}{\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha'}} + \sum_{\beta'} \frac{iM_{\alpha\beta'}^* \rho_{\beta\beta'}}{\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha'}}. \quad (3.102)$$

Setzt man diesen Ausdruck in (3.77) und (3.79) ein, so erhält man

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{\alpha\alpha'} &= -(\tilde{\gamma}_{\alpha\alpha'} + i\tilde{\delta}_{\alpha\alpha'})\rho_{\alpha\alpha'} - \sum_{\alpha'' \neq \alpha} i\tilde{\Omega}_{\alpha\alpha'\alpha''}\rho_{\alpha''\alpha'} - \sum_{\alpha'' \neq \alpha'} (i\tilde{\Omega}_{\alpha'\alpha\alpha''})^* \rho_{\alpha\alpha''} \\ &+ \sum_{\beta\beta'} M_{\alpha\beta} M_{\alpha'\beta'}^* \left(\frac{1}{\Gamma_{\beta\alpha'} + i\Delta_{\beta'\alpha'}} + \frac{1}{\Gamma_{\beta'\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha}} \right) \rho_{\beta\beta'}, \end{aligned} \quad (3.103)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{\beta\beta'} &= -(\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} + i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}) \rho_{\beta\beta'} - \sum_{\beta'' \neq \beta} i\tilde{\Omega}_{\beta\beta'\beta''} \rho_{\beta''\beta'} - \sum_{\beta'' \neq \beta'} (i\tilde{\Omega}_{\beta'\beta\beta''})^* \rho_{\beta\beta''} \\ &+ \sum_{\alpha\alpha'} M_{\alpha\beta}^* M_{\alpha'\beta'} \left(\frac{1}{\Gamma_{\beta'\alpha} - i\Delta_{\beta'\alpha'}} + \frac{1}{\Gamma_{\beta\alpha'} + i\Delta_{\beta\alpha}} \right) \rho_{\alpha\alpha'} + r_{\beta\beta'}, \end{aligned} \quad (3.104)$$

wobei

$$\tilde{\gamma}_{\alpha\alpha'} + i\tilde{\delta}_{\alpha\alpha'} := \gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'} + \sum_{\beta} \left(\frac{|M_{\alpha\beta}|^2}{\Gamma_{\beta\alpha'} + i\Delta_{\beta\alpha}} + \frac{|M_{\alpha'\beta}|^2}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha'}} \right), \quad (3.105)$$

$$\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} + i\tilde{\delta}_{\beta\beta'} := \Gamma_{\beta\beta'} + i\omega_{\beta\beta'} + \sum_{\alpha} \left(\frac{|M_{\alpha\beta}|^2}{\Gamma_{\beta'\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha}} + \frac{|M_{\alpha\beta'}|^2}{\Gamma_{\beta\alpha} + i\Delta_{\beta'\alpha}} \right), \quad (3.106)$$

$$i\tilde{\Omega}_{\alpha\alpha'\alpha''} := \sum_{\beta} \frac{M_{\alpha\beta} M_{\alpha''\beta}^*}{\Gamma_{\beta\alpha'} + i\Delta_{\beta\alpha''}}, \quad (3.107)$$

$$i\tilde{\Omega}_{\beta\beta'\beta''} := i\Omega_{\beta\beta''} + \sum_{\alpha} \frac{M_{\alpha\beta}^* M_{\alpha\beta''}}{\Gamma_{\beta'\alpha} - i\Delta_{\beta''\alpha}}. \quad (3.108)$$

Falls in diesen Dichtematrixgleichungen die modifizierten Kopplungskonstanten kleiner sind als die modifizierten Zerfalls- und Oszillationskonstanten, kann die Ratengleichung-Näherung in (3.103 – 3.104) analog (2.43 – 2.44) durchgeführt werden. Man erhält damit Ratengleichungen, die sich, sofern man nur Terme erster Ordnung in $M_{\alpha\beta}/(\Gamma_{\beta\alpha} \pm \Delta_{\beta\alpha})$ berücksichtigt, zu

$$\frac{d}{dt} \rho_{\alpha\alpha} = -\tilde{\gamma}_{\alpha\alpha} \rho_{\alpha\alpha} + \sum_{\beta} K_{\alpha\beta} \rho_{\beta\beta} + \tilde{r}_{\alpha\alpha}, \quad (3.109)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{\beta\beta} = -\tilde{\Gamma}_{\beta\beta} \rho_{\beta\beta} + \sum_{\beta' \neq \beta} K_{\beta\beta'} \rho_{\beta'\beta'} + \sum_{\alpha} K_{\beta\alpha} \rho_{\alpha\alpha} + \tilde{r}_{\beta\beta} \quad (3.110)$$

vereinfachen, wobei

$$\begin{aligned} \tilde{\Gamma}_{\beta\beta} &:= \tilde{\gamma}_{\beta\beta} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} i\Omega_{\beta'\beta}}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} + \text{c.c.} \right) - \sum_{\beta' \neq \beta} \sum_{\alpha} \left(\frac{1}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} \right. \\ &\quad \times \left. \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} M_{\alpha\beta} M_{\alpha\beta'}^*}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha}} + \frac{i\Omega_{\beta'\beta} M_{\alpha\beta'} M_{\alpha\beta}^*}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta'\alpha}} \right) + \text{c.c.} \right), \end{aligned} \quad (3.111)$$

$$\begin{aligned} K_{\beta\beta'} &:= |i\Omega_{\beta\beta'}|^2 \frac{2\tilde{\gamma}_{\beta\beta'}}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'}^2 + \tilde{\delta}_{\beta\beta'}^2} + \sum_{\alpha} \left(\frac{1}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} \right. \\ &\quad \times \left. \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} M_{\alpha\beta} M_{\alpha\beta'}^*}{\Gamma_{\beta'\alpha} + i\Delta_{\beta'\alpha}} + \frac{(i\Omega_{\beta\beta'})^* M_{\alpha\beta'} M_{\alpha\beta}^*}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta'\alpha}} \right) + \text{c.c.} \right), \end{aligned} \quad (3.112)$$

$$\begin{aligned} K_{\alpha\beta} &:= 2|M_{\alpha\beta}|^2 \frac{\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \Delta_{\beta\alpha}^2} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta'\beta} M_{\alpha\beta'} M_{\alpha\beta}^*}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} \right. \\ &\quad \times \left. \left(\frac{1}{\Gamma_{\beta'\alpha} + i\Delta_{\beta\alpha}} + \frac{1}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta'\alpha}} \right) + \text{c.c.} \right), \end{aligned} \quad (3.113)$$

$$K_{\beta\alpha} := 2|M_{\alpha\beta}|^2 \frac{\Gamma_{\beta\alpha}}{\Gamma_{\beta\alpha}^2 + \Delta_{\beta\alpha}^2} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} M_{\alpha\beta} M_{\alpha\beta'}^*}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} \right)$$

$$\times \left(\frac{1}{\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha}} + \frac{1}{\Gamma_{\beta'\alpha} + i\Delta_{\beta'\alpha}} \right) + \text{c.c.} \Big), \quad (3.114)$$

$$\tilde{r}_{\alpha\alpha} := \sum_{\beta} \sum_{\beta' \neq \beta} \frac{r_{\beta\beta'} M_{\alpha\beta} M_{\alpha\beta'}^*}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} + i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} \left(\frac{1}{\Gamma_{\beta\alpha} + i\Delta_{\beta'\alpha}} + \frac{1}{\Gamma_{\beta'\alpha} - i\Delta_{\beta\alpha}} \right), \quad (3.115)$$

$$\begin{aligned} \tilde{r}_{\beta\beta} := & r_{\beta\beta} - \sum_{\beta' \neq \beta} \left(\frac{i\Omega_{\beta\beta'} r_{\beta'\beta}}{\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'}} + \text{c.c.} \right) \\ & - \sum_{\beta' \neq \beta} \sum_{\alpha} \left(\frac{M_{\alpha\beta}^* M_{\alpha\beta'} r_{\beta'\beta}}{(\Gamma_{\beta\alpha} - i\Delta_{\beta'\alpha})(\tilde{\gamma}_{\beta\beta'} - i\tilde{\delta}_{\beta\beta'})} + \text{c.c.} \right). \end{aligned} \quad (3.116)$$

Läßt man hier Terme $\propto M_{\alpha\beta} M_{\alpha\beta'} \Omega_{\beta\beta'}$ weg, so gehen diese Ratengleichungen wieder über in (3.94 – 3.95).

Kapitel 4

Dielektronische Rekombinationsprozesse

4.1 Laserinduzierte dielektronische Rekombination

4.1.1 Allgemeine Theorie

Bis jetzt haben wir nur Rekombinationsprozesse betrachtet, in denen die Kopplung zwischen diskreten und kontinuierlichen Zuständen durch einem Laser induziert werden. Die in Kap. 2 entwickelte Theorie ist jedoch so allgemein formuliert, daß wir sie ebensogut auf Systeme mit elektrostatischen Kopplungen zwischen diskreten und kontinuierlichen Zuständen anwenden können, also auf Systeme, die autoionisierende Zustände beinhalten. Mit anderen Worten, der in Kap. 2 entwickelte Formalismus erlaubt es uns, dielektronische Rekombinationsprozesse zu studieren.

Der einfachste dielektronische Rekombinationsprozeß ist Rekombination in einen diskreten autoionisierenden Zustand, von dem aus spontaner Zerfall in gebundene Zustände stattfinden kann. Dieses Problem ist äquivalent zu laserinduzierter Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand, was in Kap. 3.1 diskutiert wurde. Interessanter ist der Prozeß der laserinduzierten dielektronischen Rekombination, der sowohl Laserkopplungen als auch elektrostatische Kopplungen zwischen diskreten und kontinuierlichen Zuständen beinhaltet und der dem inversen Prozeß zur laserinduzierten Autoionisation entspricht. Analog zur laserinduzierten Zweistufenrekombination könnte aus diesem Prozeß ein nützliches Verfahren zur Vermessung von autoionisierenden Zuständen mit hohem Drehimpuls entstehen. Soweit wir wissen, ist die Spektroskopie autoionisierender Zustände mittels laserinduzierter dielektronischer Rekombination experimentell jedoch bisher noch nicht realisiert worden.

In diesem Kapitel untersuchen wir den einfachst möglichen laserinduzierten dielektronischen Rekombinationsprozeß, der neben dem Kontinuum einen diskreten autoionisierenden Zustand $|a\rangle$ mit der Energie E_a und einen diskreten gebundenen Zustand $|g\rangle$ mit der Energie

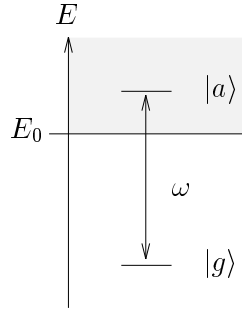


Abb. 4.1: Schematische Darstellung des atomaren Systems

E_g beinhaltet, der durch das Laserfeld

$$E(t) = \epsilon e^{i\omega t} + \epsilon^* e^{-i\omega t} \quad (4.1)$$

($\omega \approx E_a - E_g$) an $|a\rangle$ und an das Kontinuum gekoppelt ist (Abb. 4.1). Unter Verwendung der Dipol-Näherung und der “Rotating Wave Approximation” lauten die Außerdiagonalmatrixelemente des Hamiltonoperators dieses Systems

$$\langle g|H|a\rangle = \langle g|\mu|a\rangle \cdot \epsilon e^{i\omega t} =: D_{ga} e^{i\omega t}, \quad (4.2)$$

$$\langle g|H|c\rangle = \langle g|\mu|c\rangle \cdot \epsilon e^{i\omega t} =: D_{gc} e^{i\omega t}, \quad (4.3)$$

$$\langle a|H|c\rangle = \langle a|\frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}|c\rangle =: V_{ac}, \quad (4.4)$$

wobei μ der Dipol-Operator ist und $\frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}$ die elektrostatische Elektron-Elektron-Wechselwirkung symbolisiert. Die Zeitabhängigkeit der Matrixelemente $\langle g|H|a\rangle$, $\langle g|H|c\rangle$ wird z.B. durch die Verwendung von „Systemzuständen“ (siehe Kap. 3.1) beseitigt.

Wie immer beschreiben wir das System durch die Dichtematrix ρ mit der Anfangsbedingung

$$\rho(t=0) = \int dc p_c |c\rangle\langle c|. \quad (4.5)$$

Unter der Annahme, daß D_{gc} , V_{ac} und die Anfangsverteilung p_c hinreichend langsam mit der Kontinuumsenergie E_c variieren, so daß die Näherungen (2.18 – 2.19) und (2.21 – 2.22) gerechtfertigt sind, können wir den Kontinuum-Anteil in den Dichtematrixgleichungen eliminieren und erhalten

$$\frac{d}{dt}\rho_{gg} = -(\gamma_g + \Gamma_g)\rho_{gg} - i\bar{D}_{ga}\rho_{ag} - (i\bar{D}_{ga})^*\rho_{ga} + r_g, \quad (4.6)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{ag} = -(\Gamma_{ag} + i\delta_{ag})\rho_{ag} - i\bar{D}_{ag}\rho_{gg} - (i\bar{D}_{ga})^*\rho_{aa} + r_{ag}, \quad (4.7)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{aa} = -(\gamma_a + \Gamma_a)\rho_{aa} - i\bar{D}_{ag}\rho_{ga} - (i\bar{D}_{ag})^*\rho_{ag} + r_a \quad (4.8)$$

mit

$$\Gamma_{ag} := \frac{\gamma_a + \gamma_g + \Gamma_a + \Gamma_g}{2}, \quad (4.9)$$

$$\delta_{ag} := E_a - E_g - \omega - \delta_a + \delta_g, \quad (4.10)$$

$$i\bar{D}_{ag} := iD_{ga}^* + \pi \int dc V_{ac} D_{gc}^* \delta(E_c - E_g - \omega) - i\mathcal{P} \int dc \frac{V_{ac} D_{gc}^*}{E_c - E_g - \omega}, \quad (4.11)$$

$$i\bar{D}_{ga} := iD_{ga} + \pi \int dc D_{gc} V_{ac}^* \delta(E_c - E_a) - i\mathcal{P} \int dc \frac{D_{gc} V_{ac}^*}{E_c - E_a}, \quad (4.12)$$

$$\Gamma_a := 2\pi \int dc |V_{ac}|^2 \delta(E_c - E_a), \quad (4.13)$$

$$\Gamma_g := 2\pi \int dc |D_{gc}|^2 \delta(E_c - E_g - \omega), \quad (4.14)$$

$$\delta_a := \mathcal{P} \int dc \frac{|V_{ac}|^2}{E_c - E_a}, \quad (4.15)$$

$$\delta_g := \mathcal{P} \int dc \frac{|D_{gc}|^2}{E_c - E_g - \omega}, \quad (4.16)$$

$$r_a := 2\pi \int dc |V_{ac}|^2 p_c \delta(E_c - E_a), \quad (4.17)$$

$$r_g := 2\pi \int dc |D_{gc}|^2 p_c \delta(E_c - E_g - \omega), \quad (4.18)$$

$$\begin{aligned} r_{ag} := & \pi \int dc V_{ac} D_{gc}^* p_c (\delta(E_c - E_a) + \delta(E_c - E_g - \omega)) \\ & + i\mathcal{P} \int dc V_{ac} D_{gc}^* p_c \left(\frac{1}{E_c - E_a} - \frac{1}{E_c - E_g - \omega} \right) \end{aligned} \quad (4.19)$$

(γ_g und γ_a sind die spontanen Zerfallsraten von $|g\rangle$ bzw. $|a\rangle$; wir vernachlässigen den spontanen Zerfall von $|c\rangle$).

Falls $|\bar{D}_{ag}|, |\bar{D}_{ga}| \ll |\Gamma_{ag} + i\delta_{ag}|$ gilt, können wir die Ratengleichung-Näherung durchführen und erhalten

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{gg} = & r_g - \left(\frac{i\bar{D}_{ga} r_{ag}}{\Gamma_{ag} + i\delta_{ag}} + \text{c.c.} \right) - (\gamma_g + \Gamma_g) \rho_{gg} \\ & + \left(\frac{i\bar{D}_{ga} i\bar{D}_{ag}}{\Gamma_{ag} + i\delta_{ag}} + \text{c.c.} \right) \rho_{gg} + \frac{2\Gamma_{ag} |i\bar{D}_{ga}|^2}{\Gamma_{ag}^2 + \delta_{ag}^2} \rho_{aa}, \end{aligned} \quad (4.20)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{aa} = & r_a - \left(\frac{i\bar{D}_{ag} r_{ga}}{\Gamma_{ag} - i\delta_{ag}} + \text{c.c.} \right) - (\gamma_a + \Gamma_a) \rho_{aa} \\ & + \left(\frac{i\bar{D}_{ag} i\bar{D}_{ga}}{\Gamma_{ag} - i\delta_{ag}} + \text{c.c.} \right) \rho_{aa} + \frac{2\Gamma_{ag} |i\bar{D}_{ag}|^2}{\Gamma_{ag}^2 + \delta_{ag}^2} \rho_{gg}. \end{aligned} \quad (4.21)$$

Im Spezialfall isotroper Anfangsverteilung und unter der Annahme, daß das Kontinuum und die Anfangsverteilung flach genug sind, um $E_g + \omega$ durch E_a in den Kontinuum-Integralen (4.11 – 4.19) annähern zu können, und daß D_{ga} , D_{gc} und V_{ac} reell sind, lauten (4.11 – 4.12)

$$\bar{D}_{ag} = \bar{D}_{ga} = \tilde{D} \left(1 - \frac{i}{q} \right), \quad (4.22)$$

wobei wir, der allgemeinen Konvention folgend (z.B. [14]),

$$\tilde{D} := D_{ga}^* - \mathcal{P} \int dc \frac{V_{ac} D_{gc}^*}{E_c - E_a}, \quad (4.23)$$

$$q := \frac{\tilde{D}}{\pi \int dc V_{ac} D_{gc}^* \delta(E_c - E_a)} \quad (4.24)$$

eingeführen. (4.17 – 4.19) vereinfachen sich damit zu

$$r_a = p_0 \Gamma_a, \quad (4.25)$$

$$r_g = p_0 \Gamma_g, \quad (4.26)$$

$$r_{ag} = 2 p_0 \frac{\tilde{D}}{q} \quad (4.27)$$

mit

$$p_0 = p(E_c = E_a). \quad (4.28)$$

Damit lauten die Dichtematrixgleichungen

$$\frac{d}{dt} \rho_{gg} = -\gamma_g \rho_{gg} - \Gamma_g (\rho_{gg} - p_0) - \frac{\tilde{D}}{q} \cdot 2 \operatorname{Re} \rho_{ag} + \tilde{D} \cdot 2 \operatorname{Im} \rho_{ag}, \quad (4.29)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{ag} = -(\Gamma_{ag} + i \delta_{ag}) \rho_{ag} - i \tilde{D} (\rho_{gg} - \rho_{aa}) - \frac{\tilde{D}}{q} (\rho_{aa} + \rho_{gg} - 2 p_0), \quad (4.30)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{aa} = -\gamma_a \rho_{aa} - \Gamma_a (\rho_{aa} - p_0) - \frac{\tilde{D}}{q} \cdot 2 \operatorname{Re} \rho_{ag} - \tilde{D} \cdot 2 \operatorname{Im} \rho_{ag} \quad (4.31)$$

und die Ratengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{gg} &= -\gamma_g \rho_{gg} - \Gamma_g (\rho_{gg} - p_0) + \frac{2 \tilde{D}^2}{\Gamma_{ag}^2 + \delta_{ag}^2} \\ &\times \left(\frac{\Gamma_{ag}}{q^2} (\rho_{aa} + \rho_{gg} - 2 p_0) + \Gamma_{ag} (\rho_{aa} - \rho_{gg}) + \frac{2 \delta_{ag}}{q} (\rho_{gg} - p_0) \right), \end{aligned} \quad (4.32)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{aa} &= -\gamma_a \rho_{aa} - \Gamma_a (\rho_{aa} - p_0) + \frac{2 \tilde{D}^2}{\Gamma_{ag}^2 + \delta_{ag}^2} \\ &\times \left(\frac{\Gamma_{ag}}{q^2} (\rho_{aa} + \rho_{gg} - 2 p_0) + \Gamma_{ag} (\rho_{gg} - \rho_{aa}) - \frac{2 \delta_{ag}}{q} (\rho_{aa} - p_0) \right). \end{aligned} \quad (4.33)$$

4.1.2 Modellrechnungen

Um die Gültigkeitskriterien für die Ratengleichung-Näherung explizit zu überprüfen und um zu untersuchen, inwieweit sich Autoionisationsspektren und Spektren der laserinduzierten dielektronischen Rekombination wesentlich unterscheiden, führen wir jetzt analog [14] einige Modellrechnungen durch. Wir gehen aus von den Dichtematrixgleichungen (4.29 – 4.31) bzw. von den Ratengleichungen (4.32 – 4.33), nehmen also an, daß die Matrixelemente des Hamiltonoperators reell sind, daß wir $E_g + \omega = E_a$ in den Kontinuum-Integralen setzen können und daß die Anfangsverteilung isotrop ist. Außerdem erlauben wir uns,

$$\left(\int dc V_{ac} D_{gc}^* \delta(E_c - E_a) \right)^2 = \left(\int dc V_{ac}^2 \delta(E_c - E_a) \right) \left(\int dc D_{gc}^2 \delta(E_c - E_a) \right) \quad (4.34)$$

zu setzen, woraus

$$\Gamma_g = \frac{4\tilde{D}^2}{q^2 \Gamma_a} \quad (4.35)$$

folgt. Dies trifft z.B. zu, wenn $|a\rangle$ und $|g\rangle$ nur an einen einzigen gemeinsamen Kontinuumskanal koppeln (und man $c \equiv E_c$ in (4.34) setzen kann). Der Einfachheit halber vernachlässigen wir spontanen Zerfall, nehmen also $\gamma_g = \gamma_a = 0$ an, und betrachten rechteckige Laserpulse.

Definieren wir

$$\kappa := \frac{2\tilde{D}}{q \Gamma_a}, \quad (4.36)$$

$$\Delta := -\frac{\delta_{ag}}{\Gamma_a}, \quad (4.37)$$

sowie

$$\sigma_a := \rho_{aa} - p_0, \quad (4.38)$$

$$\sigma_g := \rho_{gg} - p_0, \quad (4.39)$$

so lauten die Dichtematrixgleichungen

$$\frac{1}{\Gamma_a} \cdot \frac{d}{dt} \sigma_g = -\kappa^2 \sigma_g - \kappa \operatorname{Re}(\rho_{ag}) + q \kappa \operatorname{Im}(\rho_{ag}), \quad (4.40)$$

$$\frac{1}{\Gamma_a} \cdot \frac{d}{dt} \sigma_a = -\sigma_a - \kappa \operatorname{Re}(\rho_{ag}) - q \kappa \operatorname{Im}(\rho_{ag}), \quad (4.41)$$

$$\frac{1}{\Gamma_a} \cdot \frac{d}{dt} \operatorname{Re}(\rho_{ag}) = -\frac{1+\kappa^2}{2} \operatorname{Re}(\rho_{ag}) - \Delta \operatorname{Im}(\rho_{ag}) - \frac{\kappa}{2} (\sigma_a + \sigma_g), \quad (4.42)$$

$$\frac{1}{\Gamma_a} \cdot \frac{d}{dt} \operatorname{Im}(\rho_{ag}) = -\frac{1+\kappa^2}{2} \operatorname{Im}(\rho_{ag}) + \Delta \operatorname{Re}(\rho_{ag}) + \frac{q\kappa}{2} (\sigma_a - \sigma_g) \quad (4.43)$$

und die Ratengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_g &= -\Gamma_a \kappa^2 \sigma_g + \frac{\Gamma_a \kappa^2}{(1+\kappa^2)^2 + 4\Delta^2} \\ &\quad \times \left((1+\kappa^2) \left((1+q^2) \sigma_a + (1-q^2) \sigma_g \right) - 4q \Delta \sigma_g \right), \end{aligned} \quad (4.44)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_a &= -\Gamma_a \sigma_a + \frac{\Gamma_a \kappa^2}{(1+\kappa^2)^2 + 4\Delta^2} \\ &\quad \times \left((1+\kappa^2) \left((1-q^2) \sigma_a + (1+q^2) \sigma_g \right) + 4q \Delta \sigma_a \right). \end{aligned} \quad (4.45)$$

Wie schon in Kap. 2.4 erwähnt wurde, liegt hier der einzige Unterschied zwischen Autoionisation und laserinduzierter dielektronischer Rekombination in der Anfangsbedingung. In einem Autoionisationsprozeß ist zum Anfangszeitpunkt nur der Zustand $|g\rangle$ besetzt und $p_0 = 0$, also

$$\sigma_g(t=0) = 1, \quad (4.46)$$

$$\sigma_a(t=0) = \rho_{ag}(t=0) = 0, \quad (4.47)$$

während im Fall der laserinduzierten dielektrischen Rekombination $|g\rangle$ und $|a\rangle$ anfangs unbesetzt sind, also

$$\sigma_g(t=0) = \sigma_a(t=0) = -p_0, \quad (4.48)$$

$$\rho_{ag}(t=0) = 0 \quad (4.49)$$

gilt. Gemessen wird im Autoionisationsexperiment die Ionisationswahrscheinlichkeit $P(t) = 1 - \sigma_g(t)$ und im Rekombinationsexperiment die Rekombinationsausbeute $P(t) = \rho_{gg}(t) = \sigma_g(t) + p_0$. Berücksichtigt man, daß, wenn man im Rekombinationsprozeß $p_0 = 1$ wählt (man beachte, daß p_0 lediglich die Skalierung der Rekombinationsachse bestimmt) und die Ersetzungen $\sigma_g \rightarrow -\sigma_g$, $\sigma_a \rightarrow -\sigma_a$, $\rho_{ag} \rightarrow -\rho_{ag}$ vornimmt, die Anfangsbedingung von σ_g und die das Spektrum produzierende Meßgröße P in beiden Prozessen übereinstimmen, so sieht man, daß der wesentliche Unterschied zwischen dem Autoionisations- und dem Rekombinationsprozeß in der Anfangsbedingung von σ_a liegt. Man sollte daher für niedrige Laserintensitäten, d.h. für schwache Kopplungen zwischen $|g\rangle$ und $|a\rangle$, keine wesentlichen Unterschiede zwischen den Spektren beider Prozesse erwarten.

Abb. 4.2 vergleicht die Rekombinationsspektren für $q = 5$ und für $\tilde{D} = 0.1\Gamma_a$ bzw. $\tilde{D} = 0.2\Gamma_a$, also für relativ niedrige Laserintensitäten, mit den entsprechenden Autoionisationsspektren. In der Tat sehen wir, daß die Spektren beider Prozesse im wesentlichen übereinstimmen. Mit zunehmender Laserintensität (Abb. 4.3 – 4.4) treten zunehmende Unterschiede zwischen den Spektren in Resonanznähe auf. Besonders auffällig ist die Tatsache, daß das Minimum des Rekombinationsspektrums zwar an gleicher Position, d.h. bei gleicher Verstimmung δ_{ag} , auftritt wie das Minimum des Autoionisationsspektrums, jedoch eine deutlich geringere Höhe aufweist.

Dieses Minimum ist auf eine nichtzerfallende Mode ρ_{nd} des Dichtematrixgleichungssystems (4.29 – 4.31) für $\Delta = \frac{q}{2}(\kappa^2 - 1)$ (also für die Verstimmung $\delta_{ag} = \frac{q\Gamma_a}{2}(1 - \kappa^2)$) zurückzuführen. Hat die Dichtematrix ρ den Anfangswert

$$\rho_{nd} = \frac{1}{1 + \kappa^2} |g\rangle\langle g| + \frac{\kappa^2}{1 + \kappa^2} |a\rangle\langle a| - \frac{\kappa}{1 + \kappa^2} (|g\rangle\langle a| + |a\rangle\langle g|), \quad (4.50)$$

so ist $\rho(t) = \rho_{nd}$ für alle Zeiten t . ρ_{nd} stellt einen kohärenten Zustand dar und entspricht der Wellenfunktion (analog Gl. (22) in [15])

$$|\psi_{nd}\rangle = \frac{1}{\sqrt{1 + \kappa^2}} |g\rangle - \frac{\kappa}{\sqrt{1 + \kappa^2}} |a\rangle. \quad (4.51)$$

Im Autoionisationsprozeß lautet die Anfangsbedingung

$$\rho(t=0) = |g\rangle\langle g| = \langle g|\rho_{nd}|g\rangle\rho_{nd} + \text{zerfallende Komponenten}. \quad (4.52)$$

Am Ende eines hinreichend langen Rechteckpulses bleibt nur noch die nichtzerfallende Komponente übrig. Die Besetzung des Zustands $|g\rangle$ nach dem Laserpuls beträgt damit

$$\rho_{gg}(t \rightarrow \infty) = \langle g|\rho_{nd}|g\rangle^2 = \frac{1}{(1 + \kappa^2)^2}. \quad (4.53)$$

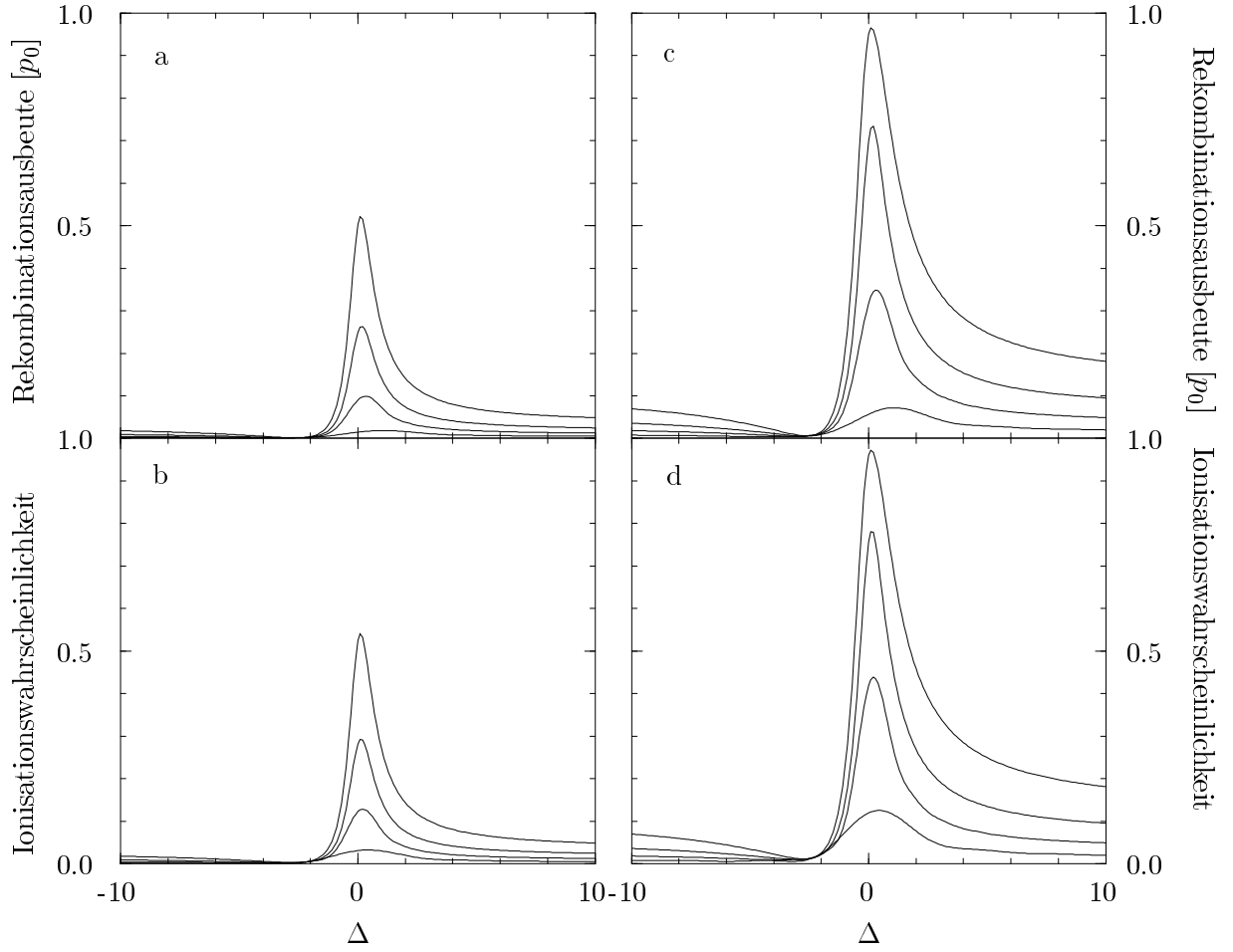


Abb. 4.2: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen errechneten Rekombinations- (a, c) und Autoionisationsspektren (b, d) für niedrige Laserintensitäten. Aufgetragen sind in (a, c) die gesamte Rekombinationsausbeute und in (b, d) die Ionisationswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 0.1 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = 0.2 \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve).

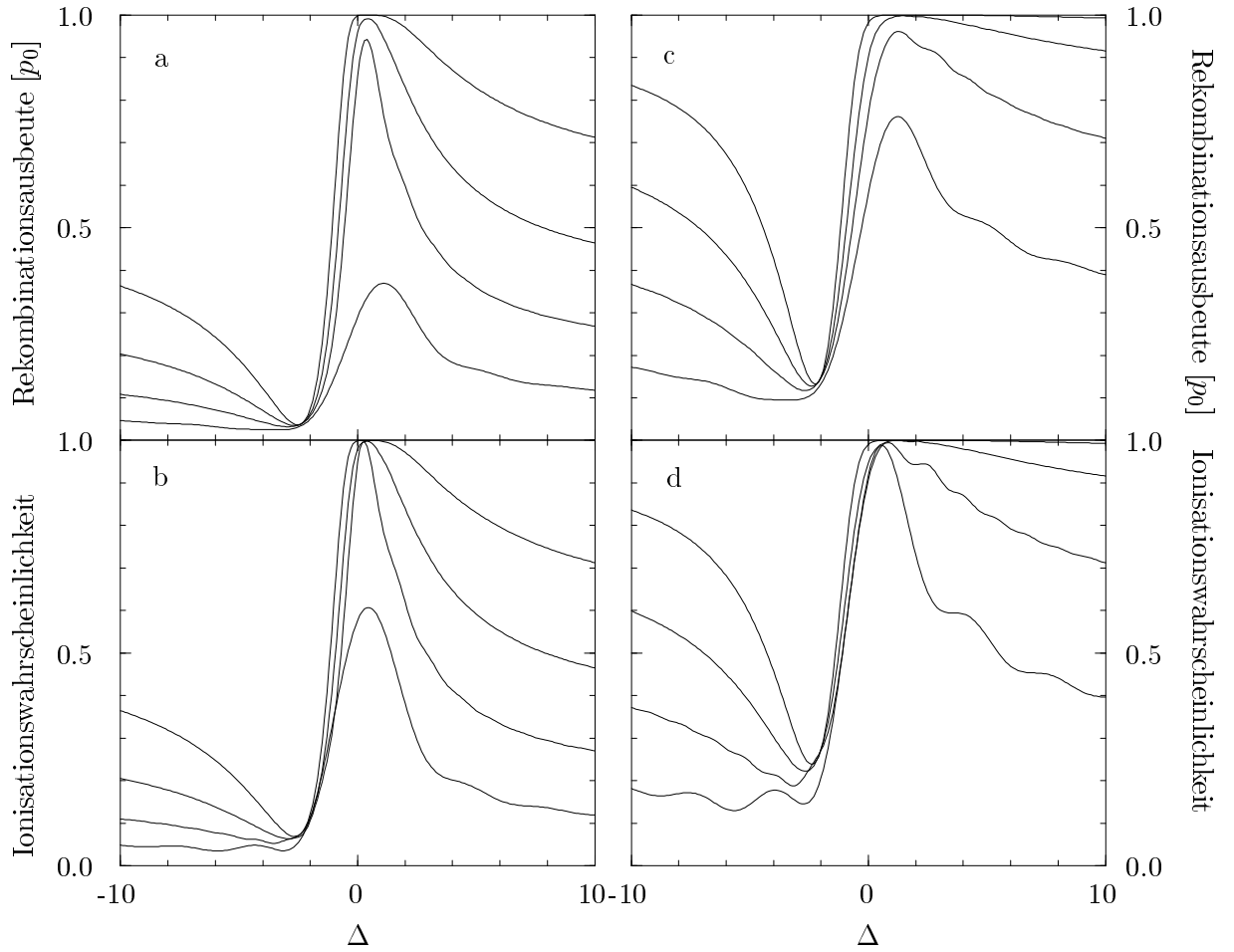


Abb. 4.3: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen errechneten Rekombinations- (a, c) und Autoionisationsspektren (b, d) für mittlere Laserintensitäten. Aufgetragen sind in (a, c) die gesamte Rekombinationsausbeute und in (b, d) die Ionisationswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 0.5 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve).

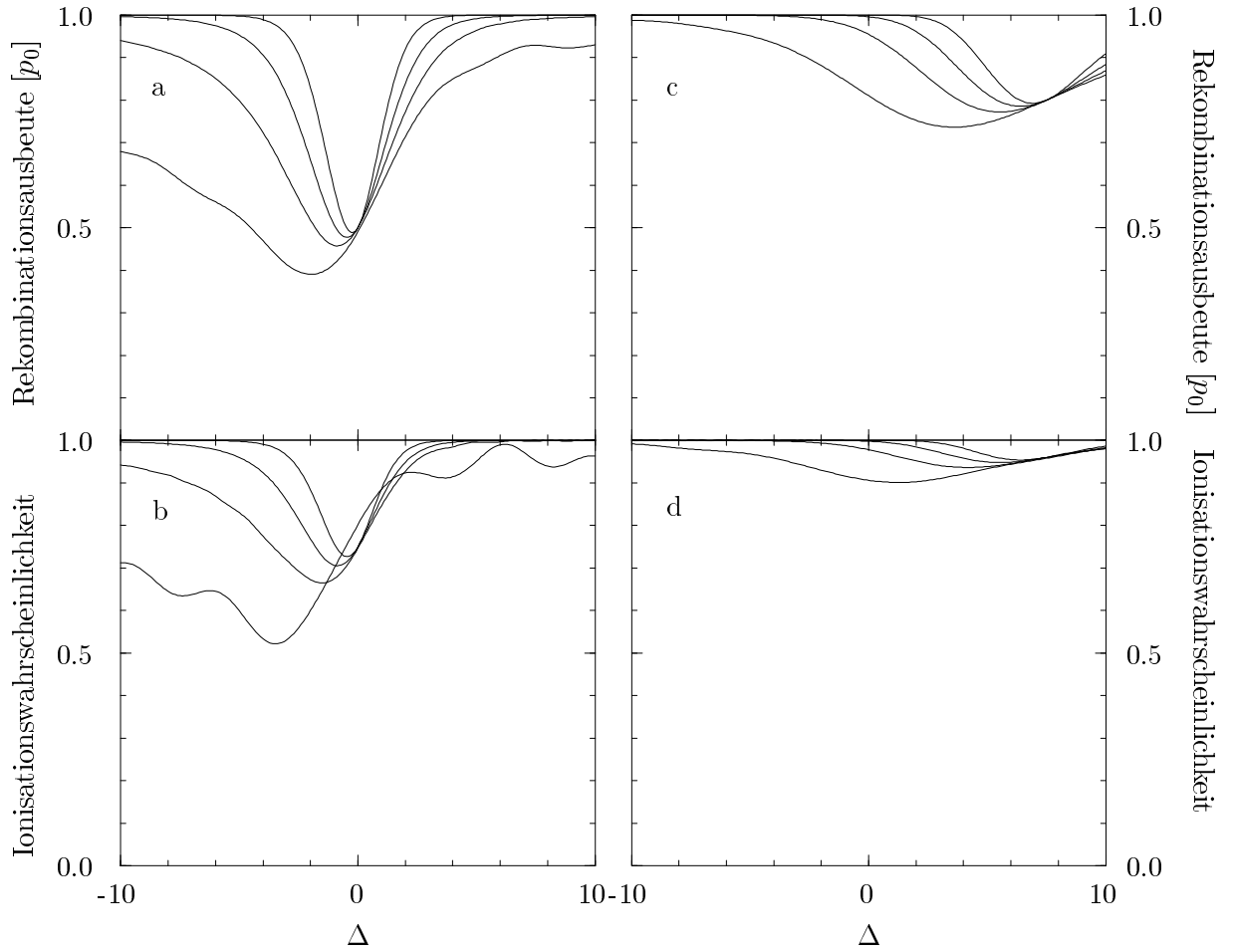


Abb. 4.4: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen errechneten Rekombinations- (a, c) und Autoionisationsspektren (b, d) für hohe Laserintensitäten. Aufgetragen sind in (a, c) die gesamte Rekombinationsausbeute und in (b, d) die Ionisationswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 2.5 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = 5 \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve).

Im Rekombinationsprozeß gilt anfangs

$$\sigma(t=0) = -p_0 (|g\rangle\langle g| + |a\rangle\langle a|) = -p_0 \rho_{nd} + \text{zerfallende Komponenten.} \quad (4.54)$$

Die Rekombinationsausbeute nach dem Laserpuls beträgt damit

$$P(t) = p_0 + \sigma_{gg}(t \rightarrow \infty) = p_0 - p_0 \frac{1}{1 + \kappa^2}. \quad (4.55)$$

Für $p_0 = 1$ beträgt die Höhe des Minimums des Rekombinationsspektrums $1 - \frac{1}{1+\kappa^2}$ und ist damit größer als die Höhe des Minimums des Autoionisationsspektrums, die $1 - \frac{1}{(1+\kappa^2)^2}$ beträgt. Dieser Unterschied ist extrem bei $\kappa = 1$ bzw. $\tilde{D} = \frac{q}{2} \Gamma_a$ (Abb. 4.4a, b).

In realistischen Situationen muß jedoch noch der Beitrag spontaner dielektronischer Rekombination berücksichtigt werden. Wie in Abb. 4.5 sehen, verursacht eine nichtverschwindende spontane Zerfallsrate γ_a von $|a\rangle$ einen konstanten Untergrund im Rekombinationsspektrum und damit eine erheblich verschlechterte Auflösung der Resonanz, die für $\gamma_a \gg \tilde{D}$ schließlich ganz verschwindet (Abb. 4.5a), während im Autoionisationsspektrum der spontane Zerfall von $|a\rangle$ nur die Höhe der Resonanz gering beeinflusst. Ein wichtiges Kriterium dafür, ob die Vermessung einer autoionisierenden Resonanz mittels laserinduzierter dielektronischer Rekombination mit hinreichend guter Auflösung durchgeführt werden kann, scheint demnach das Verhältnis der laserinduzierten Kopplung $\langle g|H|a\rangle$ zur Rate γ_a der spontanen dielektronischen Rekombination zu sein.

In Abb. 4.6 – 4.8 vergleichen wir die Rekombinationsspektren, die Dichtematrixgleichungen und Ratengleichungen liefern. Wir sehen, daß nur für niedrige Laserintensitäten beide Gleichungssysteme weitgehend übereinstimmende Resultate liefern. Abweichungen treten lediglich für kurze Pulsdauern $T \sim \frac{1}{\Gamma_a}$ in der Nähe der Resonanz auf. Für mittlere und hohe Laserintensitäten jedoch stimmen die Spektren von Dichtematrixgleichungen und Ratengleichungen nur noch weit außerhalb der Resonanz überein. In Resonanznähe liefern Ratengleichungen auch für $\Gamma_a T \gg 1$ deutlich geringere, zum Teil sogar negative Besetzungen von $|g\rangle$.

Insgesamt können wir jedoch feststellen, daß in dem Bereich, in dem die Bedingung für die Ratengleichung-Näherung

$$\left| \tilde{D} \left(1 + \frac{i}{q} \right) \right|, \frac{1}{T} \ll \left| \frac{\Gamma_g + \Gamma_a}{2} + i\delta_{ag} \right| \quad (4.56)$$

erfüllt ist, die Ratengleichungen das Rekombinationsspektrum weitgehend korrekt reproduzieren. Es sieht so aus, als wäre (4.56) eine hinreichende, jedoch nicht immer notwendige Bedingung dafür, daß die Ratengleichungen zur Berechnung von Rekombinationsspektren ausreichen.

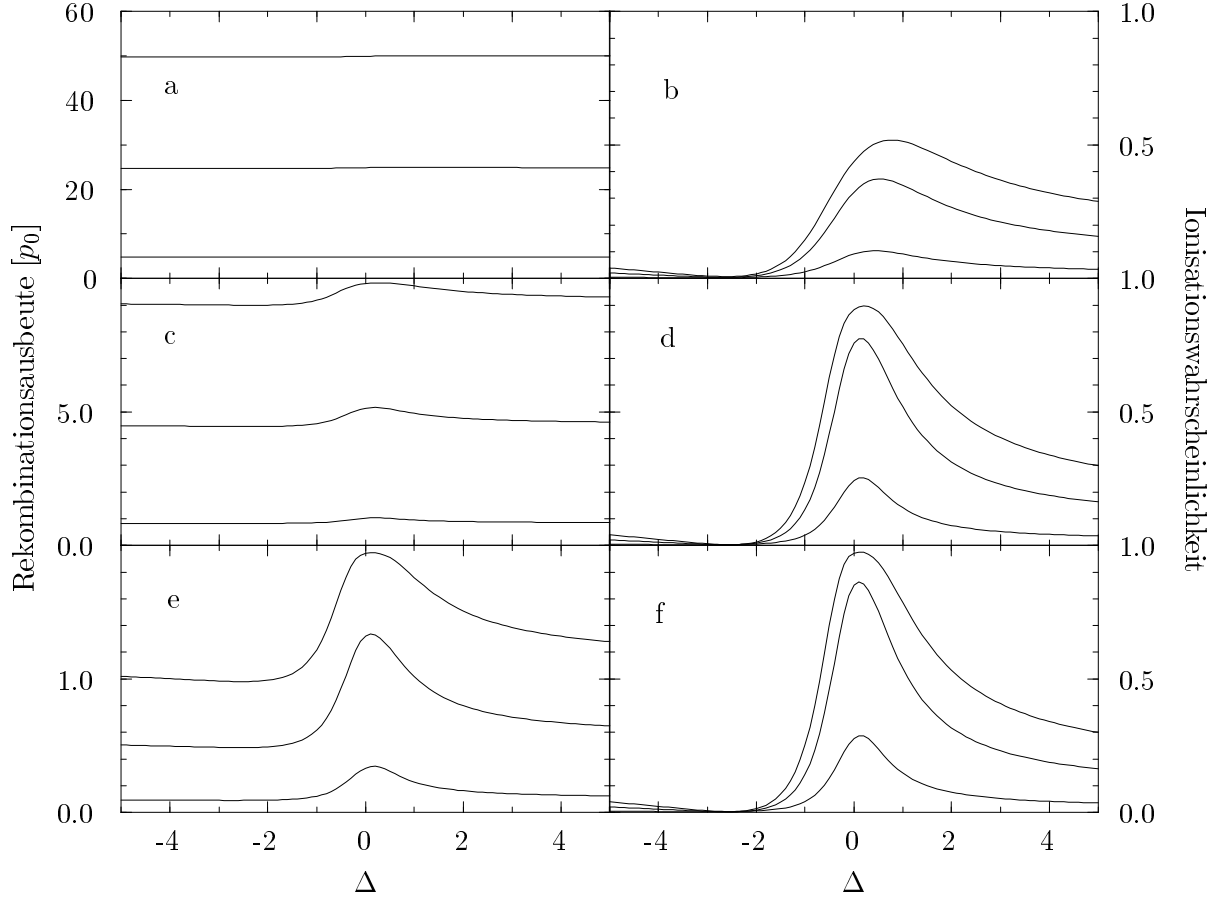


Abb. 4.5: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen unter zusätzlicher Berücksichtigung spontaner dielektronischer Rekombination errechneten Rekombinations- (a, c, e) und Autoionisationsspektren (b, d, f). Aufgetragen sind in (a, c, e) die gesamte Rekombinationsausbeute und in (b, d, f) die Ionisationswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$, $\tilde{D} = 0.1 \Gamma_a$ und für die spontanen Zerfallsraten $\gamma_a = 0.01 \Gamma_a$ (e, f), $\gamma_a = 0.1 \Gamma_a$ (c, d) und $\gamma_a = \Gamma_a$ (a, b) zu den Zeiten $T = 10 / \Gamma_a$ (untere Kurve), $T = 50 / \Gamma_a$ (mittlere Kurve), $T = 100 / \Gamma_a$ (obere Kurve).

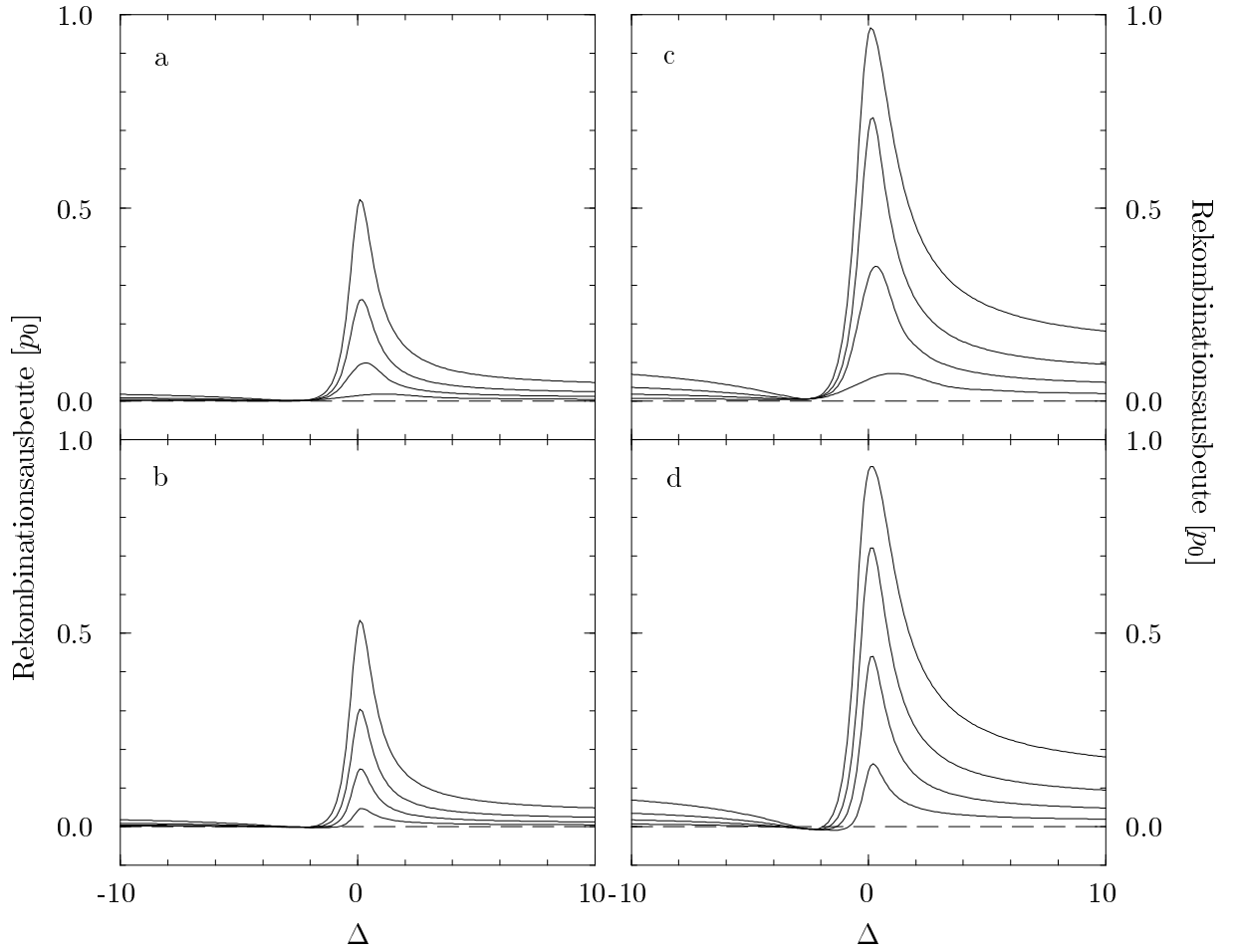


Abb. 4.6: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen (a, c) und der Ratengleichungen (b, d) errechneten Rekombinationsspektren für niedrige Laserintensitäten. Aufgetragen ist die gesamte Rekombinationsausbeute als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 0.1 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = 0.2 \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve). Die gestrichelte Linie markiert das Nullniveau.

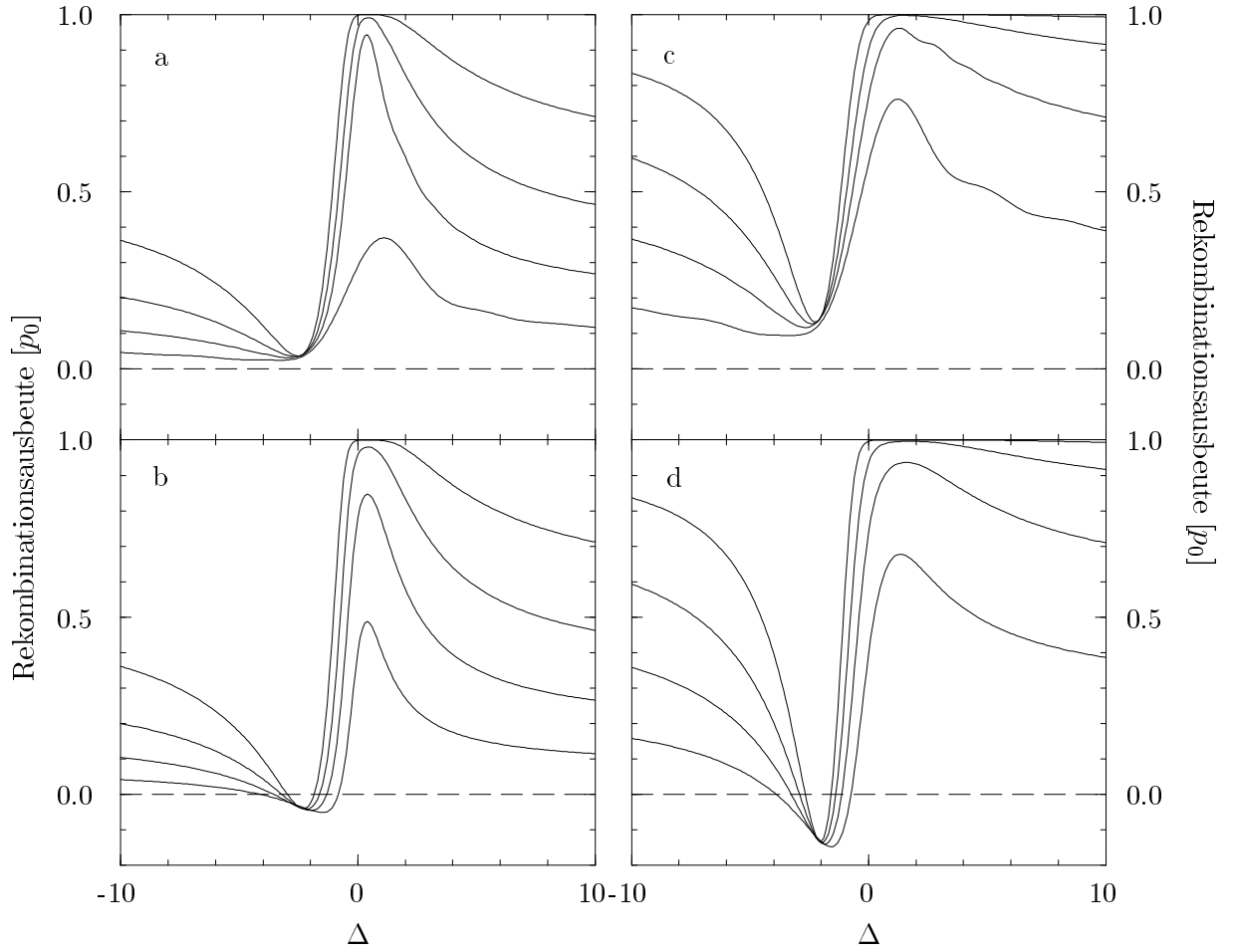


Abb. 4.7: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen (a, c) und der Ratengleichungen (b, d) errechneten Rekombinationsspektren für mittlere Laserintensitäten. Aufgetragen ist die gesamte Rekombinationsausbeute als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 0.5 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve). Die gestrichelte Linie markiert das Nullniveau.

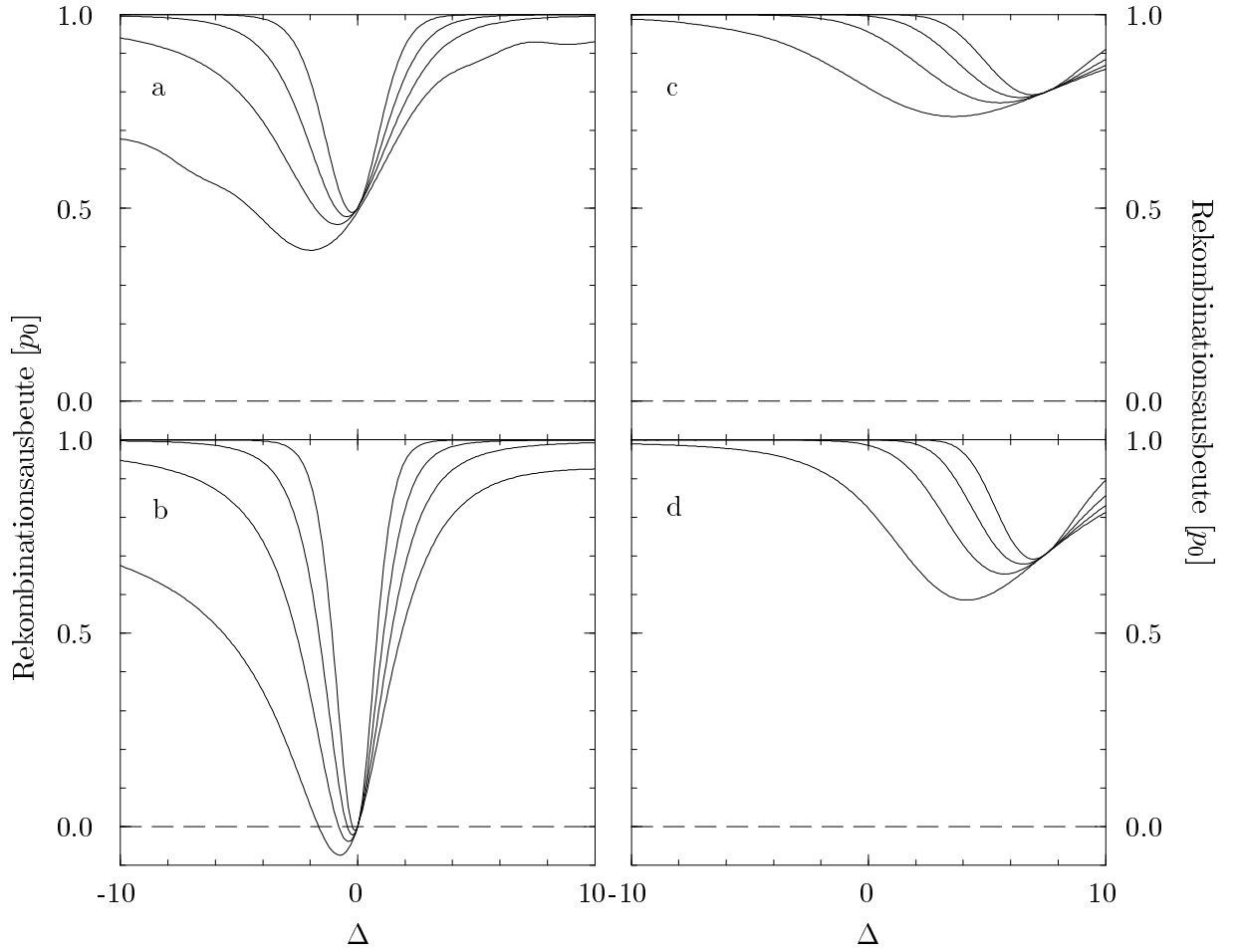


Abb. 4.8: Vergleich der unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen (a, c) und der Ratengleichungen (b, d) errechneten Rekombinationsspektren für hohe Laserintensitäten. Aufgetragen ist die gesamte Rekombinationsausbeute als Funktion der Laserfrequenz für $q = 5$ und $\tilde{D} = 2.5 \Gamma_a$ (a, b) bzw. $\tilde{D} = 5 \Gamma_a$ (c, d) zu den Zeiten $T = 2 / \Gamma_a$ (unterste Kurve), $T = 5 / \Gamma_a$ (zweitunterste Kurve), $T = 10 / \Gamma_a$ (zweitoberste Kurve), $T = 20 / \Gamma_a$ (oberste Kurve). Die gestrichelte Linie markiert das Nullniveau.

4.2 Weitere dielektronische Rekombinationsprozesse

Natürlich lassen sich mit dem in Kap. 2 entwickelten Formalismus auch komplexere dielektronische Rekombinationsprozesse beschreiben. Ein Beispiel wäre laserinduzierte dielektronische Rekombination über eine Gruppe autoionisierender Niveaus in eine Gruppe gebundener Niveaus. Es ist offensichtlich, wie die diesen und andere, ähnliche Prozesse beschreibenden Dichtematrix- bzw. Ratengleichungen hergeleitet werden können. Nach der genauen Spezifikation der diskreten Zustände und ihrer Wechselwirkungen mit dem Kontinuum und untereinander und nach der Beseitigung der Zeitabhängigkeit der Matrixelemente des Hamiltonoperators durch die Verwendung von „Systemzuständen“ können die Gleichungssysteme aus Kap. 2 direkt übernommen werden.

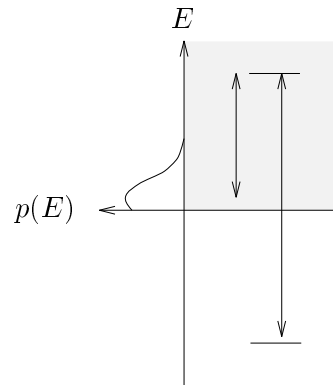


Abb. 4.9: Schematische Darstellung des atomaren Systems. $p(E)$ bezeichnet die Anfangsverteilung der Elektronen

Ein weiterer, im Hinblick auf die Erzeugung und Verstärkung kurzwelliger Laserstrahlung interessanter Prozeß ist der in Abb. 4.9 dargestellte und in [16] diskutierte Prozeß, in dem die Anfangsverteilung mit einem Laser an einen autoionisierenden Zustand und von dort mit einem zweiten Laserfeld an gebundene Zustände gekoppelt wird. Da dieses System jedoch verschiedene, aneinander gekoppelte Kontinua enthält, läßt es sich nicht vollständig mit dem in Kap. 2 entwickelten Formalismus beschreiben. Zwar ist es im Prinzip möglich, verschiedene Kontinuumszustände $|c\rangle$ mit ihren spezifischen Kopplungen an die diskreten Zustände im dem allgemeinen Formalismus zugrunde liegenden Modell (2.1 – 2.3) zu spezifizieren, doch sind Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Kontinuumszuständen in (2.1 – 2.3) nicht vorgesehen. Tatsächlich führt die Einführung von Kontinuum-Kontinuum-Außerdiagonalelementen im Hamilton-Operator zu erheblichen Komplikationen bei der Elimination der Kontinua. Im Rahmen der in Kap. 2.2 praktizierten Vorgehensweise würden diese Außerdiagonalelemente vollständig eliminiert werden. Allenfalls Korrekturen höherer Ordnung, für deren konsi-

stente Herleitung das in Kap. 2.3 verwendete Verfahren nicht ausreicht, könnten Kontinuum-Kontinuum-Kopplungen in die effektiven Dichtematrixgleichungen (2.30) miteinbeziehen.

Abgesehen von Prozessen, in denen Übergänge zwischen verschiedenen Kontinuumszuständen eine wesentliche Rolle spielen, lassen sich jedoch sämtliche laserinduzierten bzw. dielektronischen Rekombinationsprozesse mit dem in Kap. 2 entwickelten Formalismus beschreiben.

Kapitel 5

Anwendung auf ein Experiment

5.1 Beschreibung des Experiments

In diesem Kapitel wenden wir unsere Theorie auf ein Zweistufenrekombinationsexperiment an, das am Schwerionenspeicherring in Heidelberg durchgeführt wurde [7, 8].

In diesem Experiment wurde im Ionenspeicherring ein C^{5+} -Ionenstrahl mit der Ionengeschwindigkeit $v = 0.131c$ und der relativen longitudinalen Impulsbreite (FWHM) $\Delta p/p = 2 \cdot 10^{-4}$ mit einem kalten, intensiven Elektronenstrahl gleicher Geschwindigkeit überlagert. Mit dem 8 ns langen, antiparallel zum Ionenstrahl gerichteten Puls eines Nd:YAG Lasers mit der Intensität $I_Y = 100 \text{ MW/cm}^2$ wurden Elektronen vom Kontinuum in Zustände mit der Hauptquantenzahl $n = 16$ von C^{4+} befördert. Mit dem 13 ns langen Puls eines durchstimmbaren Farbstofflasers, der mit dem Nd:YAG Laserpuls zeitlich synchronisiert wurde, wurden Übergänge von Zuständen mit $n = 16$ in Zustände mit $n = 9$ stimuliert. Mit einem zweiten, um 40 ns gegenüber dem ersten Puls verzögerten Nd:YAG Laserpuls mit der Intensität 30 MW/cm^2 wurden in Zuständen mit $n = 16$ gebliebene rekombinierte Ionen, die sich zu diesem Zeitpunkt wieder außerhalb des Elektron-Ion-Überlagerungsbereichs befanden, reionisiert. Dies erhöhte die Empfindlichkeit der Rekombinationsmessung gegenüber Zweistufen-Übergänge. Die rekombinierten Ionen wurden im Feld des nächsten Ablenkmagneten vom Hauptstrahl abgetrennt und mit einem Ionendetektor gemessen. Für die Farbstofflaserintensitäten $I_d = 10 \text{ kW/cm}^2$, 100 kW/cm^2 , 3 MW/cm^2 und 12 MW/cm^2 wurde der Verstärkungsfaktor, d.h. die gesamte induzierte Rekombinationsausbeute dividiert durch die gesamte spontane Rekombination in der Pulsdauer des Nd:YAG Lasers, als Funktion der Farbstofflaserfrequenz gemessen.

Dieses Experiment beinhaltet den in Kap. 3.3 diskutierten Zweistufenrekombinationsprozeß. Um den dort entwickelten Formalismus hier anzuwenden, identifizieren wir Laser 1 mit dem Nd:YAG Laser, Laser 2 mit dem Farbstofflaser, die $|\beta\rangle$ -Zustände der oberen Gruppe mit den $|16, l, m, s, m_s\rangle$ Zuständen und die $|\alpha\rangle$ -Zustände der unteren Gruppe mit

den $|9, l, m, s, m_s\rangle$ -Zuständen von C^{4+} ($|n, l, m, s, m_s\rangle$ bezeichnet den Zustand, in dem sich ein Elektron im 1S-Zustand, das andere im Zustand $|n, l, m\rangle$ befindet und in dem der Gesamtspin $s = 1$ in einer Triplett- und $s = 0$ in einer Singulett-Konfiguration ist). Die spontanen Zerfallsraten der Kontinuumszustände $|c\rangle$ und die Raten für spontane Übergänge von Zuständen mit $n = 16$ nach Zuständen mit $n = 9$ können vernachlässigt werden.

Die Impulsverteilung der Elektronen war gaußförmig mit zwei verschiedenen Breiten parallel ($T_{\parallel} = 0.5$ meV) und senkrecht ($T_{\perp} = 17$ meV) zur Strahlrichtung. Ein äußeres statisches elektrisches Feld im Elektron-Ion-Überlagerungsbereich (≈ 20 V/cm) verursachte ein Maximum der Anfangsverteilung p_c bei ca. 2 meV unterhalb der feldfreien Kontinuumschante. Durch Anpassung der Ionengeschwindigkeit wurde die Nd:YAG Laser-Frequenz im Ruhesystem der Ionen auf die Energiedifferenz zwischen diesem Maximum und dem $n = 16$ Niveau eingestellt.

Im Prinzip hat dieses statische elektrische Feld einen nicht unerheblichen Einfluß auf die Wellenfunktionen der Zustände nahe der Kontinuumschante. Wir haben jedoch keinen Versuch unternommen, diesen Einfluß in die Berechnung der Matrixelemente zwischen gebundenen und kontinuierlichen Zuständen miteinzubeziehen, da die zu erwartende Modifikation für unsere Zwecke nicht wesentlich sein dürfte. Für die Berechnung dieser Matrixelemente sind wir ausgegangen von $E_{\beta} + \omega_1 = E_0 + 100 \text{ cm}^{-1} =: E_R$ für alle Zustände $|\beta\rangle$ der oberen Gruppe. Bei dieser Kontinuum-Energie sollte die Modifikation der Wellenfunktionen durch das elektrische Feld vernachlässigbar sein. Der Einfachheit halber haben wir den anisotropen Charakter der Anfangsverteilung vernachlässigt und sind von

$$p_c \propto e^{-\frac{E_c}{T}} \quad \text{mit} \quad T = (T_{\perp}^2 T_{\parallel})^{\frac{1}{3}} \quad (5.1)$$

ausgegangen.

Da der Energiebereich, in dem p_c und $M_{\beta c}$ merklich variieren, mit über 40 cm^{-1} wesentlich größer ist als die Nd:YAG Laser-Linienbreite und die induzierten Zerfallsraten Γ_{β} , die unterhalb 1 cm^{-1} liegen, ist die Elimination des Kontinuums, wie sie in Kap. 2.2 durchgeführt wurde, gerechtfertigt. Aus dem gleichen Grund können wir den Korrekturterm (3.89 – 3.91) vernachlässigen und von den Dichtematrixgleichungen (3.77 – 3.79) ausgehen, um den Rekombinationsprozeß zu beschreiben. Es bleibt zu diskutieren, inwieweit wir ebensogut die Ratengleichungen (3.94 – 3.95) verwenden können bzw. inwieweit das vereinfachte Ratengleichungssystem (3.96 – 3.97), das Kopplungen über das Kontinuum nicht berücksichtigt, ausreicht.

Die Linienform des Farbstofflasers ist gemäß (3.99) in die Rechnung miteinzubeziehen. Die Linienbreite (FWHM) des Farbstofflasers betrug $2b = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ eV}$. Da keine Information über die Abschneidefrequenz β des im Experiment verwendeten Farbstofflasers vorlag, haben wir $\beta = 2b$ für die Rechnung angenommen. Außerdem haben wir angenommen, daß beide

Laserfelder in der gleichen Richtung linear polarisiert waren, und sind von gaußförmigen Laserpulsen ausgegangen.

5.2 Berechnung der Parameter

5.2.1 Atomare Parameter

Um die atomaren Energien und Dipolmatrixelemente von C^{4+} zu berechnen, wurde die Quantendefekttheorie verwendet [17, 18, 19, 20]. Für die spontanen Zerfallsraten haben wir folgenden semiklassischen Ausdruck verwendet [21], der zumindest für große l und n in wasserstoffähnlichen Zuständen eine gute Näherung darstellt:

$$\gamma_{nl} = \gamma_0 \cdot \frac{Z^4}{n^3 l(l+1)} \quad (5.2)$$

mit

$$\gamma_0 = \frac{2}{3} \alpha^5 m_e c^2 \approx 1.07 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}, \quad (5.3)$$

wobei m_e die Elektronenmasse und Z die Kernladung bezeichnen (in unserem Fall ist $Z = 5$ zu setzen). Für $l = 0$ haben wir $\gamma_{n,l=1}$ verwendet.

Die Wellenfunktionen der gebundenen Zustände $|n, l, m\rangle$ sind durch

$$\psi_{nlm}(\mathbf{r}) = \tilde{R}_{nl}(r) Y_{lm}(\Omega) \quad (5.4)$$

gegeben, wobei Y_{lm} die Kugelflächenfunktionen und \tilde{R}_{nl} die radialen Eigenfunktionen, die die Quantendefekttheorie liefert, bezeichnen. Damit lauten die Dipolmatrixelemente zwischen zwei gebundenen Zuständen

$$\langle n, l, m | e z | n', l', m' \rangle = e \delta_{mm'} (\delta_{l', l+1} A_{l+1, m} r_{l, l+1}^{nn'} + \delta_{l', l-1} A_{l, m} r_{l, l-1}^{nn'}) \quad (5.5)$$

mit

$$A_{l, m} := \sqrt{\frac{l^2 - m^2}{4l^2 - 1}} \quad (5.6)$$

und

$$r_{l, l'}^{nn'} := \int_0^\infty \tilde{R}_{nl}(r) \tilde{R}_{n'l'}(r) r^3 dr. \quad (5.7)$$

Die Kontinuumszustände seien durch $|c\rangle = |E, l, m\rangle$ parametrisiert. Ihre Wellenfunktionen sind durch

$$\psi_{Elm}(\mathbf{r}) = N_E R_{El}(r) Y_{lm}(\Omega) \quad (5.8)$$

gegeben, wobei die Radialfunktionen R_{El} die Normierungsbedingung

$$\int_0^\infty R_{E'l}(r) R_{El}(r) r^2 dr = \frac{\pi}{2} \delta(E - E') \quad (5.9)$$

erfüllen. Führen wir die Ersetzung

$$\int dc \dots \rightarrow \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \int_{E_0}^{\infty} dE D(E) \dots \quad (5.10)$$

durch, wobei $D(E)$ eine geeignet gewählte Zustandsdichte ist, so folgt aus der Normierungsbedingung $\int dc \langle c|c' \rangle = 1$

$$N_E = \left(\frac{\pi}{2} D(E) \right)^{-\frac{1}{2}}. \quad (5.11)$$

Damit lauten die Dipolmatrixelemente zwischen gebundenen Zuständen und Kontinuumszuständen

$$\langle n, l, m | e z | E, l', m' \rangle = e N_E \delta_{mm'} (\delta_{l', l+1} A_{l+1, m} r_{l, l+1}^{nE} + \delta_{l', l-1} A_{l, m} r_{l, l-1}^{nE}) \quad (5.12)$$

mit

$$r_{l, l'}^{nE} := \int_0^{\infty} \tilde{R}_{nl}(r) R_{El'}(r) r^3 dr. \quad (5.13)$$

Ein Integral der Form

$$J = \int dc f(E_c) \langle n, l, m | z | E_c, l_c, m_c \rangle \langle E_c, l_c, m_c | z | n', l', m' \rangle \quad (5.14)$$

liefert also nur für $l' = l$, $l' = l + 2$ und $l' = l - 2$ nichtverschwindende Werte.

Unter Anwendung obiger Relationen erhalten wir für die durch den Nd:YAG Laser induzierten Zerfalls-, Oszillations-, und Kopplungskonstanten die Ausdrücke

$$\Gamma_{(16, l, m)} = 4 |e \epsilon_1|^2 \left(A_{l+1, m}^2 \left(r_{l, l+1}^{16, E_R} \right)^2 + A_{l, m}^2 \left(r_{l, l-1}^{16, E_R} \right)^2 \right), \quad (5.15)$$

$$\delta_{(16, l, m)} = \frac{2}{\pi} |e \epsilon_1|^2 \mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{A_{l+1, m}^2 \left(r_{l, l+1}^{16, E} \right)^2 + A_{l, m}^2 \left(r_{l, l-1}^{16, E} \right)^2}{E - E_R} dE, \quad (5.16)$$

$$\text{Re}(i\Omega_{(lm), (l\pm 2, m)}) = 2 |e \epsilon_1|^2 A_{l\pm 1, m} A_{l+1\pm 1, m} r_{l, l\pm 1}^{16, E_R} r_{l\pm 2, l\pm 1}^{16, E_R}, \quad (5.17)$$

$$\text{Im}(i\Omega_{(lm), (l\pm 2, m)}) = -\frac{2}{\pi} |e \epsilon_1|^2 A_{l\pm 1, m} A_{l+1\pm 1, m} \mathcal{P} \int_{E_0}^{\infty} \frac{r_{l, l\pm 1}^{16, E} r_{l\pm 2, l\pm 1}^{16, E}}{E - E_R} dE. \quad (5.18)$$

Mit den mit Hilfe der Quantendefektheorie berechneten Werten [22] für die radialen Matrixelemente $r_{l, l\pm 1}^{9, 16}$, $r_{l, l\pm 1}^{16, E_R}$, die in Tab. 5.2 und Tab. 5.3 aufgeführt sind, lassen sich die Parameter $M_{\alpha\beta}$, Γ_{β} , $\text{Re}(i\Omega_{\beta\beta'})$ nach obigen Formeln problemlos berechnen.

Für $\delta_{\beta\beta'}$ und $\text{Im}(i\Omega_{\beta\beta'})$ muß jedoch ein Hauptwertintegral über die Kontinuumsenergie durchgeführt werden. Da die Berechnung dieses Integrals einen erheblichen numerischen Aufwand beinhaltet hätte, den die Problemstellung nicht gerechtfertigt hätte, haben wir stattdessen folgende Näherungen verwendet. Gemäß [23] ist die induzierte Niveaushiftung δ_{β} von Rydbergzuständen praktisch gleich der ponderomotiven Energie

$$\delta = \frac{2\pi e^2 I_Y}{m_e c \omega_1^2}, \quad (5.19)$$

wobei I_Y die Intensität und ω_1 die Frequenz des Nd:YAG Lasers im Ruhesystem der Ionen sind. Wie man anhand der Ausdrücke (5.15 – 5.18) explizit sieht, verhält sich δ_β zu Γ_β wie $\text{Im}(i\Omega_{\beta\beta'})$ zu $\text{Re}(i\Omega_{\beta\beta'})$. Daher haben wir einfach die Näherung

$$\text{Im}(i\Omega_{\beta\beta'}) \equiv \frac{4\delta \text{Re}(i\Omega_{\beta\beta'})}{\Gamma_\beta + \Gamma_{\beta'}} \quad (5.20)$$

verwendet. Da δ unterhalb der experimentellen Auflösung liegt, haben wir den Beitrag der induzierten Niveaushift in den Dichtmatrix- bzw. Ratengleichungen vernachlässigt.

5.2.2 Laser-Parameter

Die in (5.15 – 5.18) bzw. in den Definitionen (3.54 – 3.55) der Matrixelemente $M_{\alpha\beta}$, $M_{\beta c}$ auftretenden elektrischen Feldstärken ϵ lassen sich anhand

$$I = \epsilon_0 c \cdot \overline{|E(t)|^2}^t = 2 \epsilon_0 c \cdot |\epsilon|^2 \quad (5.21)$$

durch die Intensitäten I der jeweiligen Laser im Ruhesystem der Ionen ausdrücken. Die Umrechnung in die Laserintensitäten im Laborsystem erfolgt gemäß

$$I_{\text{cm}} = I_{\text{LAB}} \cdot \frac{1 + \beta}{1 - \beta}, \quad (5.22)$$

wobei $\beta \cdot c$ die Ionengeschwindigkeit ist. Ebenso sind die Frequenzen, Linienbreiten und Pulsdauern der Laser gemäß

$$\omega_{\text{cm}} = \omega_{\text{LAB}} \cdot \sqrt{\frac{1 + \beta}{1 - \beta}}, \quad (5.23)$$

$$b_{\text{cm}} = b_{\text{LAB}} \cdot \sqrt{\frac{1 + \beta}{1 - \beta}}, \quad (5.24)$$

$$\tau_{\text{cm}} = \tau_{\text{LAB}} \cdot \sqrt{\frac{1 - \beta}{1 + \beta}} \quad (5.25)$$

vom Laborsystem ins Ruhesystem der Ionen zu transformieren (die Indizes „LAB“ und „cm“ bezeichnen die jeweiligen Größen im Laborsystem bzw. im Ruhesystem der Ionen).

5.2.3 Anfangsbesetzung

Ausgehend von einer isotropen Anfangsverteilung können wir Dichtematrix- und Ratengleichungen analog (3.40) bzw. (3.41) verwenden, in denen diese Anfangsverteilung nur in Form der Wahrscheinlichkeit p_0 , ein Elektron mit der Energie E_R zu finden, auftritt. Für die Wiedergabe des experimentellen Spektrums ist die Kenntnis des genauen Werts von $p_0 = p(E_R)$ im Prinzip nicht nötig; p_0 bestimmt nur die Skalierung der Rekombinationsachse. Um den im Experiment gemessenen absoluten Verstärkungsfaktor zu reproduzieren, ist für p_0 die

Zustand $^{2s+1}(n, l)$	$^3(9, 0)$	$^1(9, 1)$	$^3(9, 1)$	$^1(9, 2)$	$^3(9, 2)$	$^3(9, 3)$
Energie [cm^{-1}]	-34499.07	-33810.24	-34092.86	-33870.5	-33884.98	-33871.43
Zustand $^{2s+1}(n, l)$	$^3(9, 4)$	$^3(9, 5)$	$^3(9, 6)$	$^3(9, 7)$	$^3(9, 8)$	
Energie [cm^{-1}]	-33871.44	-33870.14	-33869.94	-33869.81	-33869.72	
Zustand $^{2s+1}(n, l)$	$^3(16, 0)$	$^1(16, 1)$	$^3(16, 1)$	$^1(16, 2)$	$^3(16, 2)$	$^3(16, 3)$
Energie [cm^{-1}]	-10827.64	-10706.07	-10756.15	-10716.68	-10719.36	-10716.88
Zustand $^{2s+1}(n, l)$	$^3(16, 4)$	$^3(16, 5)$	$^3(16, 6)$	$^3(16, 7)$	$^3(16, 8)$	$^3(16, 9)$
Energie [cm^{-1}]	-10716.91	-10716.68	-10716.64	-10716.61	-10716.60	-10716.59
Zustand $^{2s+1}(n, l)$	$^3(16, 10)$	$^3(16, 11)$	$^3(16, 12)$	$^3(16, 13)$	$^3(16, 14)$	$^3(16, 15)$
Energie [cm^{-1}]	-10716.58	-10716.57	-10716.56	-10716.56	-10716.55	-10716.55

Tab. 5.1: Energien der verwendeten gebundenen Zustände bezogen auf die einfache Ionisationsschwelle von C^{4+} . Es bezeichnen n die Hauptquantenzahl, l die Drehimpulsquantenzahl und s den Gesamtspin des jeweiligen Zustands. Energien von Singulett-Zuständen wurden für $l = 1$ und $l = 2$ berechnet. Die Energien von $^1(n, l)$ mit $l > 2$ wurden durch die Energien von $^3(n, l)$ angenähert. Für die Energien von $^1(n, 0)$ wurden die Energien von $^1(n, 1)$ verwendet.

l	0	1	2	3	4	5	6
$r_{l,l+1}^{9,16}[a_B]$	0.393961	0.532213	0.621244	0.672939	0.695424	0.675861	0.601297
$r_{l,l-1}^{9,16}[a_B]$		0.297511	0.258560	0.199242	0.145860	0.100583	0.0636341
l	7	8					
$r_{l,l+1}^{9,16}[a_B]$	0.464989	0.272803					
$r_{l,l-1}^{9,16}[a_B]$	0.0349000	0.0144692					

Tab. 5.2: Radiale Ortsmatrixelemente zwischen Zuständen mit $n = 9$ und $n = 16$ gemäß (5.7). a_B bezeichnet den Bohrschen Radius.

l	0	1	2	3	4	5	6	7
$r_{l,l+1}^{16,E_R}[a_B^2\sqrt{m_e}]$	8.38	9.41	10.3	11.0	11.5	11.6	11.2	10.3
$r_{l,l-1}^{16,E_R}[a_B^2\sqrt{m_e}]$		6.22	5.21	4.26	3.41	2.66	2.02	1.48
l	8	9	10	11	12	13	14	15
$r_{l,l+1}^{16,E_R}[a_B^2\sqrt{m_e}]$	9.12	7.58	5.88	4.18	2.68	1.49	0.680	0.220
$r_{l,l-1}^{16,E_R}[a_B^2\sqrt{m_e}]$	1.04	0.698	0.441	0.259	0.138	0.0647	0.251	0.00695

Tab. 5.3: Radiale Ortsmatrixelemente zwischen Zuständen mit $n = 16$ und Kontinuumszuständen mit der Energie $E_R = E_0 + 100 \text{ cm}^{-1}$ gemäß (5.13) in atomaren Einheiten. a_B bezeichnet den Bohrschen Radius, m_e die Elektronenmasse.

Wahrscheinlichkeit, ein Elektron mit Energie E_R zu finden, dividiert durch die spontane Rekombinationsrate und durch die Dauer des Nd:YAG Laser-Pulses einzusetzen.

Die Anwesenheit des bereits erwähnten statischen elektrischen Feldes im Elektron-Ion-Überlagerungsbereich sorgte dafür, daß die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron anfangs mit der Energie, auf die die Frequenz des Nd:YAG Lasers eingestellt war, zu finden, um den Faktor 0.4 reduziert war gegenüber der Wahrscheinlichkeit, im feldfreien Fall ein Elektron an der Kontinuums-kante zu finden [8]. Damit und mit (5.1) ergibt sich der für die Rechnung zu verwendende Wert von p_0 zu

$$p_0 = \frac{0.4 \cdot p(E_0)}{\tau_Y R^{\text{sp}}} \quad (5.26)$$

mit

$$p(E_0) = \frac{n_e}{4} \sqrt{\frac{(2\pi)^3}{m_e^3 T_\perp^2 T_\parallel}}, \quad (5.27)$$

der Nd:YAG Laser-Pulsdauer τ_Y und der spontanen Rekombinationsrate [4]

$$R^{\text{sp}} = n_e Z^2 \cdot 1.699 \cdot 10^{-13} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{T_\perp}} \cdot (0.17 + \ln(n_{\text{cut}} + 1)). \quad (5.28)$$

Hier bezeichnen n_e die Elektronendichte, m_e die Elektronenmasse, $Z = 5$ die Rumpfladung, T_\perp die transversale und T_\parallel die longitudinale Elektronentemperatur. n_{cut} bezeichnet diejenige Hauptquantenzahl, die der Zustand des rekombinierten Ions höchstens haben darf, damit keine Reionisation vor der Detektion stattfindet. Für dieses spezielle Experiment wurde $n_{\text{cut}} \approx 30$ geschätzt [24].

Unter Verwendung dieses Ausdrucks für p_0 in den Dichtematrix- bzw. Ratengleichungen kann der Verstärkungsfaktor des Experiments recht gut reproduziert werden, wie wir im folgenden sehen werden.

5.3 Numerische Ergebnisse

Bevor wir die Ergebnisse der numerischen Integration von Dichtematrix- und Ratengleichungen präsentieren, untersuchen wir, inwieweit die Ratengleichung-Näherung überhaupt gerechtfertigt ist, inwieweit also die Ratengleichungen genügen, um das System zu beschreiben.

Die Bedingungen für die Ratengleichung-Näherung lauten (3.92 – 3.93):

$$|i\Omega_{\beta\beta'}| \ll |\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'}|, |\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha}|, \quad (5.29)$$

$$|M_{\alpha\beta}| \ll |\Gamma_{\beta\alpha} + i\delta_{\beta\alpha}|, |\Gamma_{\beta\beta'} + i\delta_{\beta\beta'}|, |\gamma_{\alpha\alpha'} + i\omega_{\alpha\alpha'}|. \quad (5.30)$$

Man beachte, daß $\Gamma_{\beta\alpha}$ gemäß (3.99) die Linienform des Farbstofflasers enthält. Da die Linienbreite des Farbstofflasers alle spontanen und induzierten Zerfallsbreiten weit übertrifft, gilt $\Gamma_{\beta\alpha} \gtrsim b \approx 0.1 \text{ cm}^{-1}$.

Für die Nd:YAG Laser-Intensität $I_Y = 10^8 \text{ W/cm}^2$ liegen die induzierten Zerfallsbreiten Γ_l zwischen 10^{-2} cm^{-1} ($l \leq 8$) und 10^{-6} cm^{-1} ($l = 15, m = 15$). Bei Zuständen mit

hohem l ist der Unterschied zwischen Γ_l und Γ_{l+2} groß; z.B. liegt $\Gamma_{l=15}$ (bzw. $\Gamma_{l=14}$) eine Größenordnung unterhalb $\Gamma_{l=13}$ (bzw. $\Gamma_{l=12}$). Der Realteil von $i\Omega_{l,l+2}$ liegt stets knapp eine Größenordnung unterhalb Γ_l und Γ_{l+2} .

Die Werte, die die Näherung (5.20) für den Imaginärteil von $i\Omega_{l,l+2}$ liefert, liegen zwischen 10^{-2} cm^{-1} (niedrige l) und 10^{-3} cm^{-1} (hohe l). Da gemäß (5.18) $\text{Im}(i\Omega_{(lm),(l\pm 2,m)}) \propto (l^2 - m^2)$ gilt, was in den Behelfsformeln (5.19) und (5.20) nicht berücksichtigt ist, erwarten wir, daß zumindest für $m \approx l$ die tatsächlichen Werte von $\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})$ unterhalb der errechneten Werte liegen.

Tab. 5.1 zeigt, daß für $l \geq 8$ die Niveauabstände $\omega_{l,l+2}$ innerhalb der oberen Gruppe bei 10^{-2} cm^{-1} liegen. Da damit $|\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})| < |\delta_{l,l+2}|$ für $l \geq 8$ gilt, sollte die Elimination von $\rho_{\beta\beta'}$ in diesem Bereich gerechtfertigt sein.

Ob die Elimination von $\rho_{\beta\beta'}$, $\rho_{\alpha\alpha'}$, $\rho_{\beta\alpha}$ für $l \leq 8$ gerechtfertigt ist, hängt von der Intensität I_d des Farbstofflasers ab. Für $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$ liegen $|M_{(9,l)(16,l+1)}|$ bei 0.07 cm^{-1} und $|M_{(9,l)(16,l-1)}|$ unterhalb 0.02 cm^{-1} und damit unterhalb der Linienbreite des Farbstofflasers und im Bereich bzw. unterhalb der Niveauabstände, die oberhalb 0.05 cm^{-1} ($n = 16$) bzw. oberhalb 0.1 cm^{-1} ($n = 9$) liegen. Damit sollte die Ratengleichung-Näherung für diese und für niedrigere Intensitäten des Farbstofflasers gültig sein. Für $I_d = 10^6 \text{ W/cm}^2$ und $I_d = 10^7 \text{ W/cm}^2$ liegen $|M_{(9,l)(16,l+1)}|$ allerdings teilweise bereits oberhalb der Farbstofflaser-Linienbreite. Im Prinzip ist damit die Ratengleichung-Näherung für diese und für höhere Intensitäten nicht durchführbar. Es bleibt jedoch zu vermuten, daß die durch $M_{\alpha\beta}$ verursachten Rabi-Oszillationen für hinreichend lange Pulsdauern keine wesentlichen Änderungen in der Gesamtausbeute der Rekombination verursachen. (Die spontanen Zerfallsraten liegen gemäß (5.2) zwischen 10^{-5} cm^{-1} ($n = 16$, $l = 15$) und 10^{-2} cm^{-1} ($n = 9$, $l = 1$) und spielen damit in obigen Betrachtungen keine Rolle.)

Mit Hilfe der Fortran-Routine DIVPAG der IMSL Library [25] wurden Ratengleichungen und Dichtematrixgleichungen über den Zeitraum, der den Farbstofflaserpuls und beide Nd:YAG Laser-Pulse umfaßt, numerisch integriert. Die gesamte induzierte Rekombinationsausbeute, die sich aus den Besetzungen in den $|\alpha\rangle$ - und $|\beta\rangle$ -Zuständen und aus dem gesamten spontanen Zerfall von diesen Zuständen zusammensetzt, wurde für variierende Farbstofflaserfrequenzen berechnet. Abb. 5.1 zeigt die zeitliche Entwicklung der Besetzungen in der oberen bzw. unteren Gruppe und die der gesamten Rekombination. Um die durch die gaußförmige Impulsverteilung der Ionen verursachte inhomogene Verbreiterung der Resonanzen miteinzubeziehen, wurde das resultierende Rekombinationsspektrum $f(\omega)$ mit der entsprechenden Frequenzverteilung gefaltet:

$$\tilde{f}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(\omega') \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi} \Delta\omega} e^{-\left(\frac{\omega - \omega'}{\Delta\omega}\right)^2} d\omega' \quad (5.31)$$

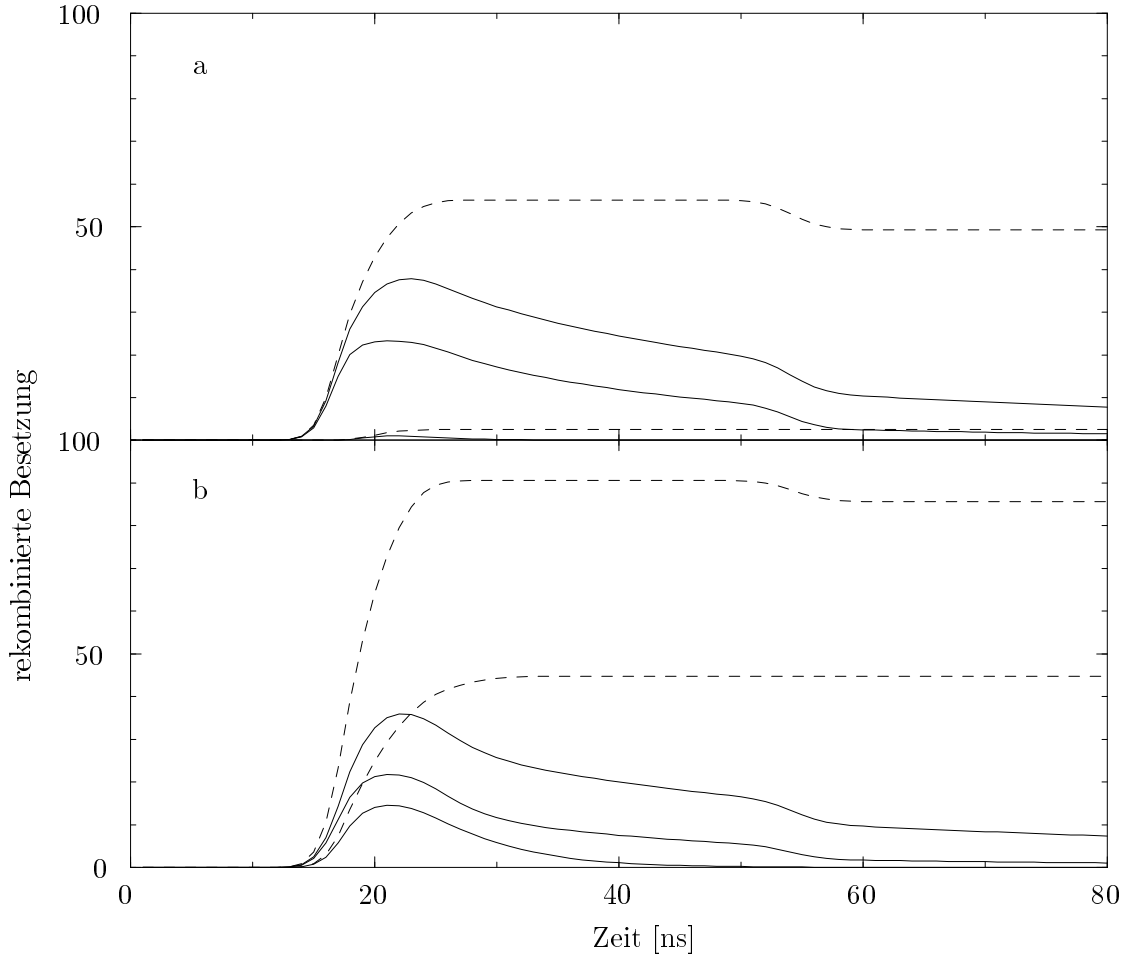


Abb. 5.1: Zeitentwicklung der rekombinierten Besetzungen in C^{4+} normiert auf die gesamte spontane Rekombination in einer Nd:YAG Laser-Pulsdauer bei der Farbstofflaserintensität $I_d = 12 \cdot 10^6$ W/cm² im nichtresonanten Fall bei der Farbstofflaserfrequenz $\omega_2 = 2.8698$ eV (a) und im resonanten Fall bei $\omega_2 = 2.87055$ eV (b). Untere durchgezogene Linie: Gesamte Besetzung in Zuständen mit $n = 9$. Mittlere durchgezogene Linie: Gesamte Besetzung in Zuständen mit $n = 16$ und $l < 9$. Obere durchgezogene Linie: Gesamte Besetzung in Zuständen mit $n = 16$. Untere gestrichelte Linie: Gesamte, über Zustände mit $n = 9$ rekombinierte Besetzung (d.h. gesamte Besetzung in Zuständen mit $n = 9$ und gesamter spontaner Zerfall von Zuständen mit $n = 9$). Obere gestrichelte Linie: Gesamte rekombinierte Besetzung. Bei 20 ns erreichen die Intensitäten des Nd:YAG Laser- und des Farbstofflaserpulses ihre Maxima. Der zweite, verzögerte Nd:YAG Laser-Puls erreicht maximale Intensität bei ca. 55 ns.

mit

$$\Delta\omega = \frac{1}{2\sqrt{\ln 2}} \beta\omega \left(\frac{\Delta p}{p} \right)_{\text{FWHM}}^2, \quad (5.32)$$

der Ionengeschwindigkeit βc und der relativen Impulsbreite der Ionen (FWHM) $\Delta p/p$ entspricht damit also dem letztendlich gemessenen Spektrum.

Die auf diese Weise berechneten Rekombinationsspektren werden in Abb. 5.2 mit den experimentellen Spektren verglichen [26]. Wir sehen, daß die Rechnung das experimentelle Ergebnis recht gut reproduziert. Der Unterschied in der Frequenzskalierung ist vermutlich auf Unsicherheiten bei der Bestimmung der Ionengeschwindigkeit im Experiment zurückzuführen [27]. Abgesehen davon tritt lediglich bei der Farbstofflaserintensität $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ eine nennenswerte Abweichung in der Höhe und Form des Hauptmaximums auf. Um zu klären, ob diese Abweichung auf ungenaue Werte für die spontanen Zerfallsraten der Zustände mit $l < 2$ zurückzuführen sind, wurde das Rekombinationsspektrum für $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ mit den um den Faktor 3 erniedrigten Zerfallsraten $\gamma_{16,l=0}$, $\gamma_{16,l=1}$, $\gamma_{9,l=0}$, $\gamma_{9,l=1}$, noch einmal berechnet. Wie in Abb. 5.3 zu sehen ist, führt diese Änderung nicht zu einer wesentlichen Modifikation des Spektrums.

Auch die Erhöhung der Abschneidefrequenz β des Farbstofflasers, über deren genauen Wert keine Information vorliegt, führt nicht zu einer verbesserten Wiedergabe des Hauptmaximums. Wie wir allerdings aus Abb. 5.4 sehen, spielt dieser Parameter eine nicht unbedeutende Rolle. Die Annahme einer rein lorentzförmigen Farbstofflaser Linienform (also $\beta = \infty$) beispielsweise würde zu erheblichen Abweichungen in der Höhe und Breite der Resonanzen führen.

Die bisher gezeigten Spektren wurden mit den Ratengleichungen (3.96 – 3.97), die Kopplungen über das Kontinuum nicht berücksichtigen, berechnet. Es hat sich erwiesen, daß die Ratengleichungen (3.94 – 3.95), die Kopplungen über das Kontinuum enthalten, und die Dichtematrixgleichungen (3.77 – 3.79) keine merklich verschiedenen Resultate liefern (Abb. 5.5). Sogar für $I_d = 10^8 \text{ W/cm}^2$ (Abb. 5.6) sind die Abweichungen zwischen den Spektren der drei Gleichungssysteme relativ gering, obwohl die Ratengleichung-Näherung bei dieser Intensität nicht mehr gültig ist.

Um zu überprüfen, ob diese gute Übereinstimmung der Spektren von Dichtematrix- und Ratengleichungen mit und ohne Kopplungen über das Kontinuum tatsächlich auf die hohen Niveauabstände zurückzuführen sind, wurden alle drei Gleichungssysteme für den unrealistischen Fall vollständiger Entartung innerhalb jeder der beiden Gruppen für $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ integriert (genauer: $E_{(9,l)} = -33869 \text{ cm}^{-1}$ für $l \geq 1$, $E_{(16,l)} = -10716 \text{ cm}^{-1}$ für alle l). Das Ergebnis ist in Abb. 5.7 gezeigt. Man sieht, daß die drei Gleichungssysteme einen unterschiedlichen Untergrund vorhersagen, der auf den Einfluß des Besetzungstrfers über das Kontinuum zurückzuführen ist. Besonders der Besetzungstrfer zwischen Zuständen mit hohem l spielt hier eine wesentliche Rolle. Da für diese Zustände $\Gamma_{l+2} \ll \Gamma_l < |\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})|$

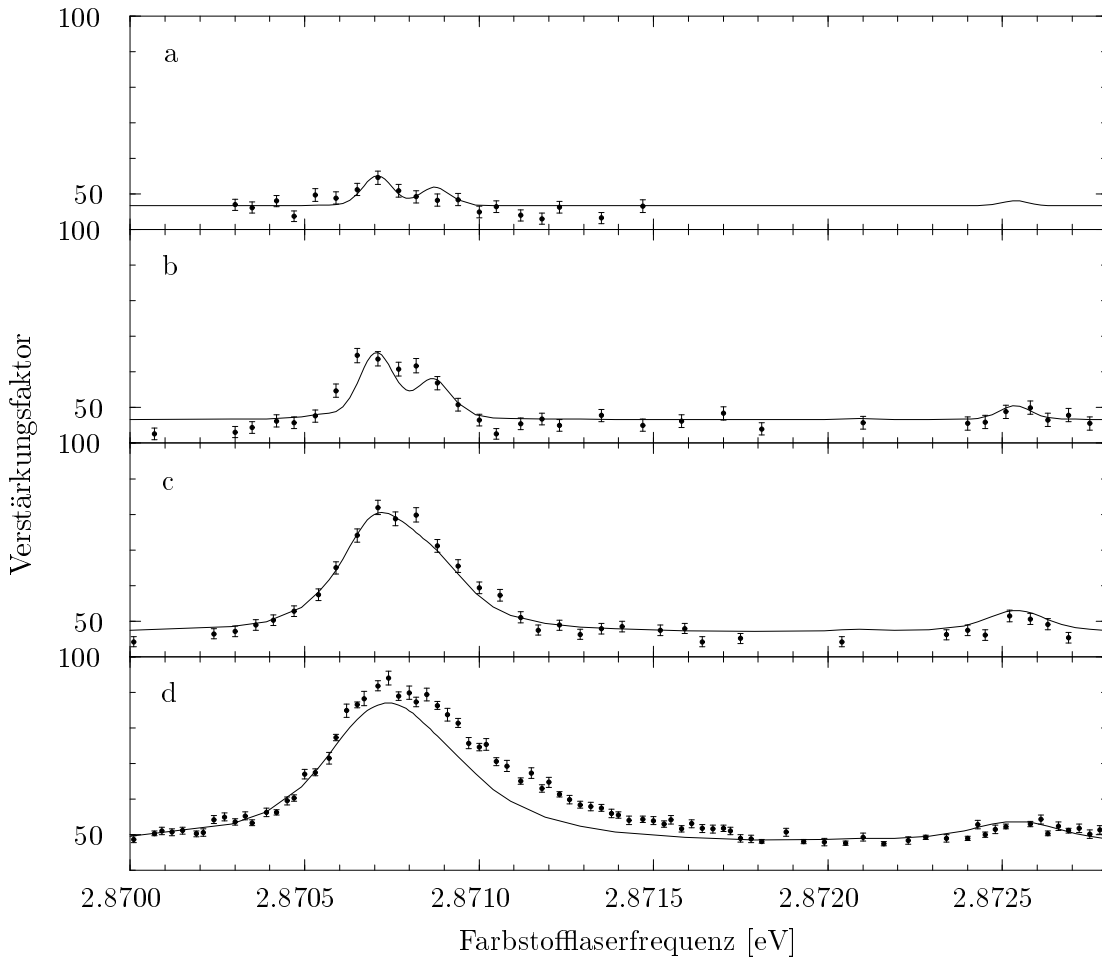


Abb. 5.2: Verstärkungsfaktor (= gesamte Rekombinationsausbeute normiert auf die spontane Rekombination in einer Nd:YAG Laser-Pulsdauer) als Funktion der Farbstofflaserfrequenz für die Farbstofflaserintensitäten (a) $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$, (b) $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$, (c) $I_d = 3 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ und (d) $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Punkte: experimentelle Daten. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Um die Form der theoretischen und experimentellen Spektren zu vergleichen, wurde die Frequenzskala der theoretischen Kurve mit dem Faktor 1.000065 multipliziert. Die Resonanz bei 2.8725 eV entspricht dem $16 \text{ } ^3\text{F} \rightarrow 9 \text{ } ^3\text{D}$ Übergang. Übergänge mit höherem Drehimpuls fallen zu der Resonanz bei 2.8707 eV zusammen.

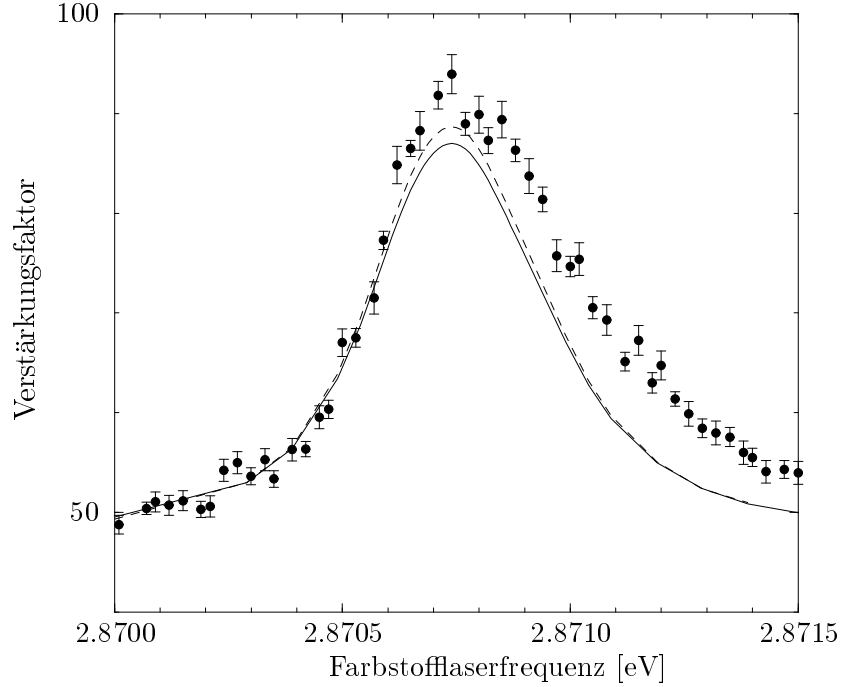


Abb. 5.3: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz für $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Punkte: experimentelle Daten. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum mit den um den Faktor 3 reduzierten spontanen Zerfallsraten $\gamma_{16,l=0}$, $\gamma_{16,l=1}$, $\gamma_{9,l=0}$, $\gamma_{9,l=1}$. Um einen Vergleich zwischen den Spektren zu ermöglichen, wurden die Frequenzskalen der berechneten Kurven mit dem Faktor 1.000065 und die Rekombinationsskala der mit reduzierten Zerfallsraten berechneten Kurve mit dem Faktor 1.05 multipliziert.

gilt, bewirkt $\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})$, wie wir in Kap. 3.2.2 gesehen haben, einen Besetzungstransfer von $|l\rangle$ nach $|l+2\rangle$ und tendiert dazu, die gesamte Rekombinationsausbeute zu erhöhen. Allerdings läßt sich jenes vereinfachte Modell nur grob-qualitativ auf diese Situation übertragen, in der auch die spontanen Zerfallsraten, die etwa so groß sind wie die induzierten Zerfallsraten für $l = 12$, berücksichtigt werden müssen.

Abgesehen davon erkennt man auch einen Unterschied zwischen den Spektren von Dichtematrix- und Ratengleichungen in der Höhe und Form der Resonanz. Dieser Unterschied ist auf durch den Farbstofflaser verursachte Rabi-Oszillationen zwischen der oberen und der unteren Gruppe zurückzuführen und verschwindet etwa für $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$ (Abb 5.8), wo im Gegensatz zu $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ die Kopplungen $|M_{\alpha\beta}|$ wesentlich kleiner sind als die

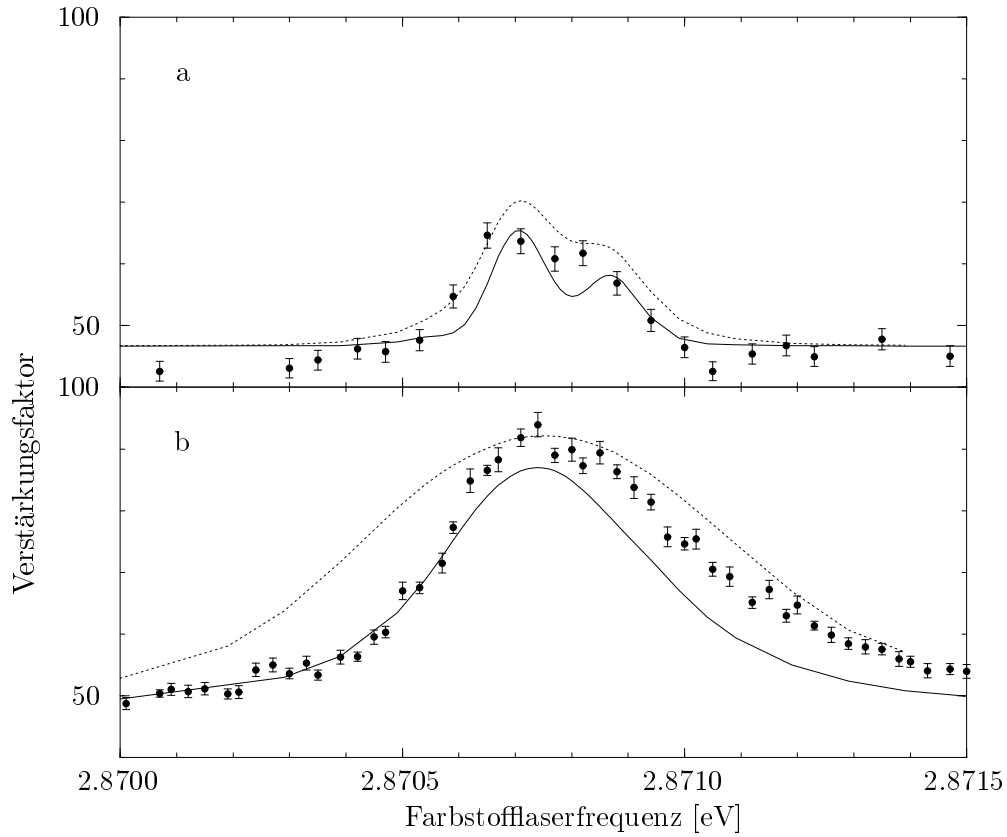


Abb. 5.4: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz für (a) $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$ und (b) $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Punkte: experimentelle Daten. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum mit um den Faktor 10 erhöhter Abschnidefrequenz β des Farbstofflasers. Um einen Vergleich mit dem Experiment zu ermöglichen, wurden die Frequenzskalen der berechneten Kurven mit dem Faktor 1.000065 multipliziert.

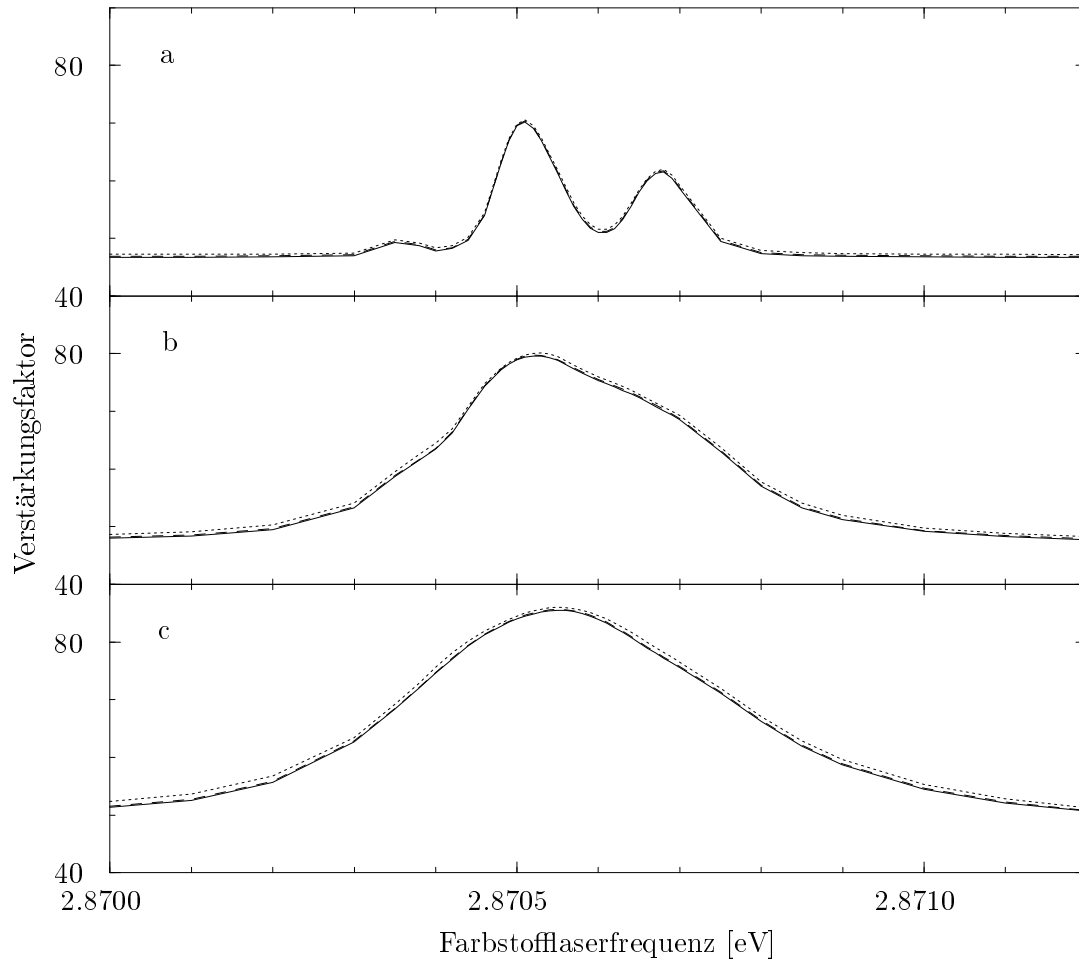


Abb. 5.5: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz ohne inhomogene Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für (a) $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$, (b) $I_d = 3 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ und (c) $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet.

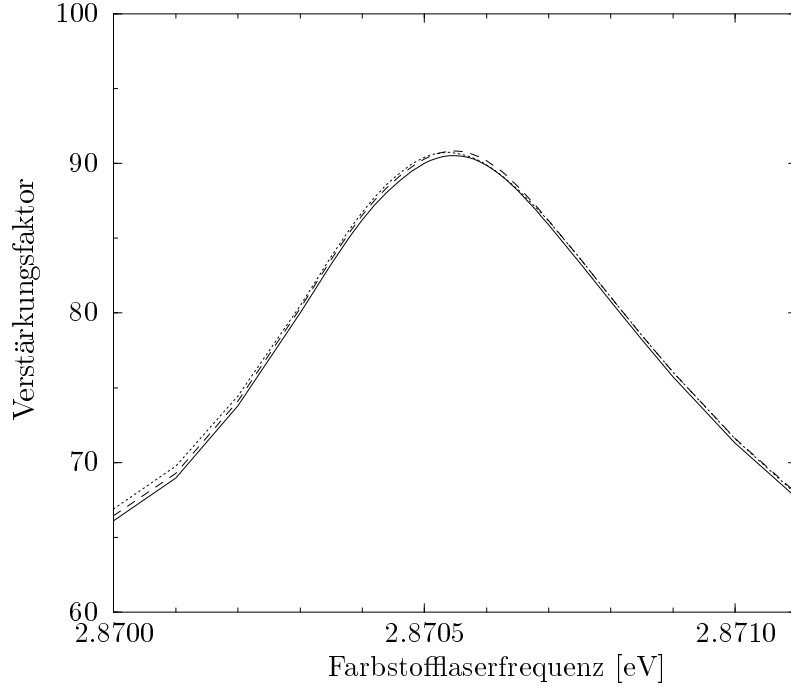


Abb. 5.6: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz ohne inhomogene Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für $I_d = 10^8 \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet.

Zerfallskonstanten $\Gamma_{\beta\alpha}$.

Eine realistischere Parameter-Modifikation, bei der man einen Unterschied zwischen den Spektren von Dichtematrix- und Ratengleichungen erwarten könnte, wäre eine Reduktion der Linienbreite des Farbstofflasers. Abb. 5.9a, 5.10a, 5.11a, c zeigen die Rekombinationsspektren, die mit um den Faktor 10 reduzierter Linienbreite und Abschneidefrequenz des Farbstofflasers ohne Berücksichtigung der inhomogenen Verbreiterung berechnet wurden. Bei dieser Linienbreite sind für $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$ die Kopplungen $|M_{(9,l)(16,l+1)}|$ etwa so groß wie die Zerfallskonstanten $\Gamma_{\beta\alpha}$. Die Elimination von $\rho_{\beta\alpha}$ ist daher für diese und für höhere Farbstofflaserintensitäten nicht mehr gerechtfertigt. Tatsächlich treten kleine Abweichungen zwischen den mit den Dichtematrix- und den Ratengleichungen errechneten Spektren auf. Abgesehen von einem Unterschied im Untergrund, der auch bei der normalen Farbstofflaser-Linienbreite

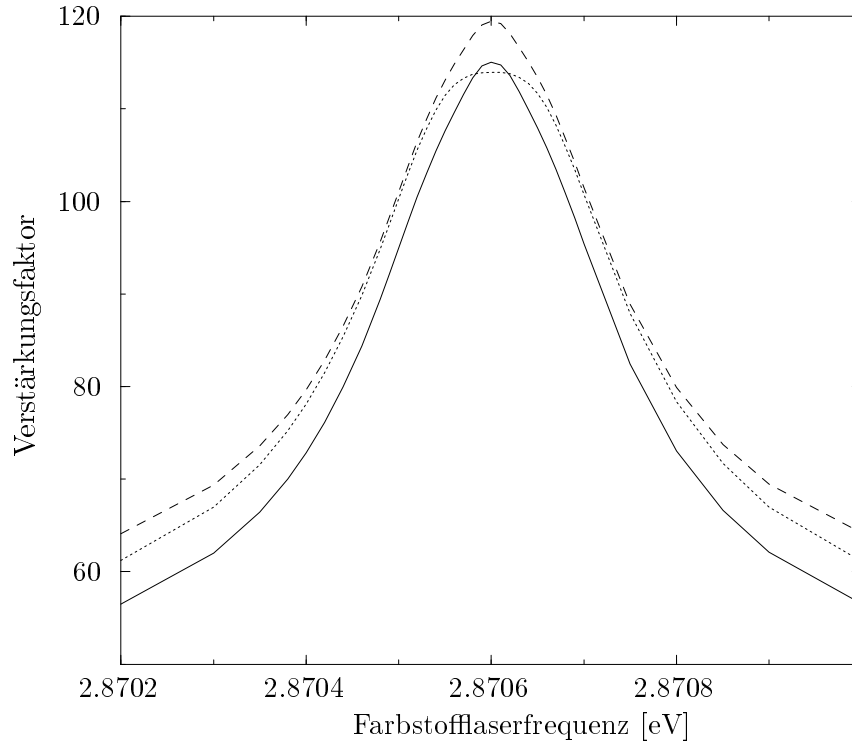


Abb. 5.7: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz ohne inhomogene Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ für den unrealistischen Fall vollständiger Entartung der Niveaus innerhalb jeder der beiden Gruppen: $E_{(9,l)} = -33869 \text{ cm}^{-1}$ für $l \geq 1$, $E_{(16,l)} = -10716 \text{ cm}^{-1}$ für alle l . Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen.

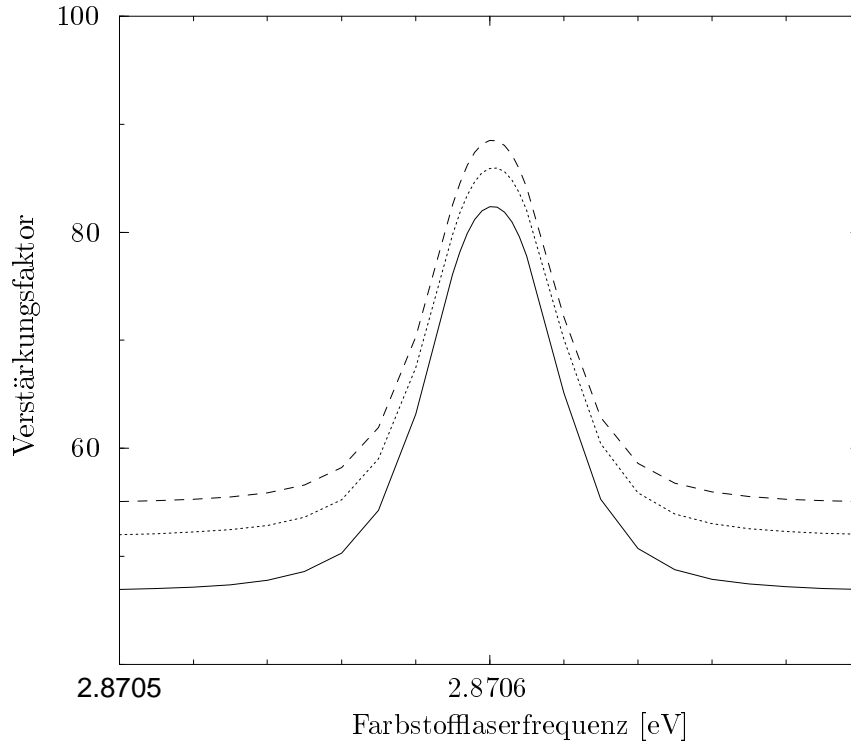


Abb. 5.8: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz ohne inhomogene Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$ für den unrealistischen Fall vollständiger Entartung der Niveaus innerhalb jeder der beiden Gruppen: $E_{(9,l)} = -33869 \text{ cm}^{-1}$ für $l \geq 1$, $E_{(16,l)} = -10716 \text{ cm}^{-1}$ für alle l . Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen.

auftritt (Abb. 5.5), sind auch geringe Unterschiede in der Höhe und Form der Resonanzen zu erkennen. Bei der Farbstofflaserintensität $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$ beispielsweise (Abb. 5.9a), bei der sämtliche Übergänge von $|n = 16, l\rangle$ nach $|n = 9, l - 1\rangle$ aufgelöst werden können, sind die von den Ratengleichungen errechneten Resonanzen, die den Übergängen $|16, 8\rangle \rightarrow |9, 7\rangle$ bzw. $|16, 4\rangle \rightarrow |9, 3\rangle$ zum Teil etwas stärker ausgeprägt als die der Dichtematrixgleichungen.

Für das tatsächlich meßbare Spektrum spielen diese Abweichungen jedoch keine Rolle. Berücksichtigen wir die inhomogene Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen (Abb. 5.9b, 5.10b, 5.11b, d), so verschlechtert sich die Auflösung der Übergänge beträchtlich, und die Spektren von Dichtematrix- und Ratengleichungen stimmen abgesehen vom Untergrund wieder überein. Für eine Messung mit höherer Auflösung ist eine Reduktion der Linienbreite des durchstimmbaren Lasers also nur dann sinnvoll, wenn zugleich die Impulsbreite der Ionen verringert wird.

Eine realistische Situation, bei der die tatsächlich meßbaren Rekombinationsspektren von Dichtematrixgleichungen und Ratengleichungen mit und ohne Kopplung über das Kontinuum unterschiedlich sind, liegt bei einer Nd:YAG Laser-Intensität von $I_Y = 10^9 \text{ W/cm}^2$ vor. (Abb. 5.12b). Bei dieser Intensität liefern Dichtematrixgleichungen und Ratengleichungen, die Kopplungen über das Kontinuum berücksichtigen, eine höhere Rekombinationsausbeute als Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Interessanterweise verschwindet dieser Unterschied wieder, wenn I_Y auf 10^{10} W/cm^2 erhöht wird (Abb. 5.12c).

Wie schon im oben diskutierten Fall der vollständigen Entartung der Niveaus der oberen Gruppe ist dieser Unterschied auf Besetzungstransfer über das Kontinuum zwischen Zuständen mit hohem l innerhalb der oberen Gruppe zurückzuführen. Bei $I_Y = 10^8 \text{ W/cm}^2$ spielt dieser Besetzungstransfer noch keine Rolle, da, wie bereits erwähnt, die Niveauabstände $|\delta_{l,l+2}|$ die Kopplungskonstanten $|\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})|$ um eine Größenordnung übersteigen. Erhöhen wir jedoch die Intensität um eine Größenordnung, so gilt $|\delta_{l,l+2}| \approx |\text{Im}(i\Omega_{l,l+2})|$. Die in Kap. 3.2 abgeleitete Rate C_l (3.44) für den Besetzungstransfer zwischen $|16, l\rangle$ und $|16, l+2\rangle$ liegt damit in der Größenordnung von Γ_l . Da $\Gamma_{l=12}$ und $\Gamma_{l=13}$ um eine Größenordnung oberhalb $\Gamma_{l=14}$ bzw. $\Gamma_{l=15}$ liegen und da $\Gamma_{l=15}$ und $\Gamma_{l=14}$ noch knapp eine Größenordnung unterhalb der inversen Nd:YAG Laser-Pulsdauer $(\tau_Y)^{-1} \approx 7 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ liegen, wir also $\Gamma_{l=15}$ bzw. $\Gamma_{l=14}$ für die Dynamik zwischen $|n = 16, l = 13\rangle$ und $|n = 16, l = 15\rangle$ bzw. $|16, 12\rangle$ und $|16, 14\rangle$ vernachlässigen können, ist es gerechtfertigt, das in Kap. 3.2.2 diskutierte Modell auf diese Situation hier anzuwenden und anhand von Abb 3.3 festzustellen, daß eine Nichtberücksichtigung des Besetzungstrfers ($\hat{=} C_l = 0$) eine niedrigere Rekombinationsausbeute liefert. Da eine höhere Gesamtrekombination im Spektrum jedoch nur einen höheren Untergrund zur Folge hat, beschränken sich die Auswirkungen der Vernachlässigung des Besetzungstrfers auf eine leichte Überschätzung der relativen Höhe der Resonanzen im Spektrum. Deren prinzipielle Formen werden jedoch richtig reproduziert.

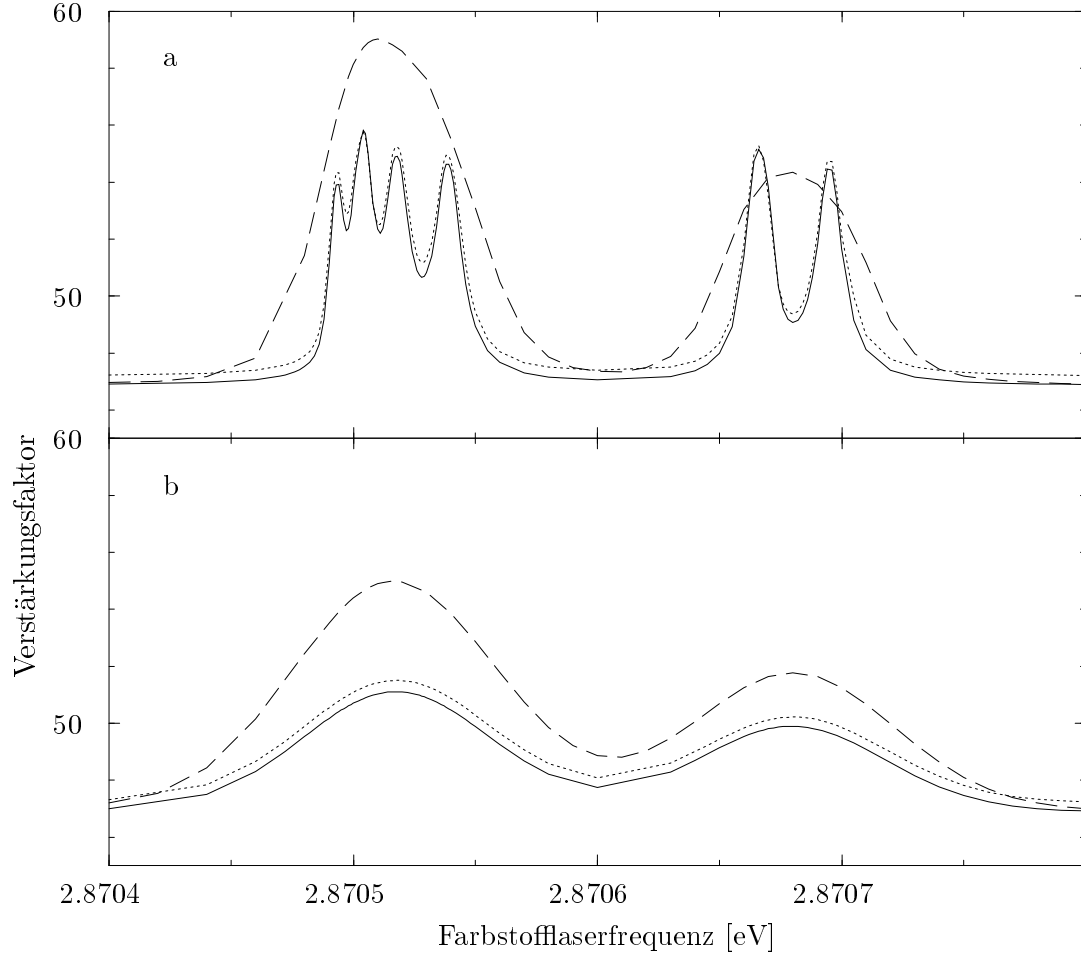


Abb. 5.9: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz (a) ohne und (b) mit inhomogener Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für $I_d = 10^4 \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für normale Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet. Aufgelöste Resonanzen in (a) von links nach rechts (vgl. auch Tab. 5.1): $|16, l=9\rangle \rightarrow |9, l=8\rangle$ Übergang bei 2.87049 eV, $|16, 8\rangle \rightarrow |9, 7\rangle$ Übergang bei 2.87050 eV, $|16, 7\rangle \rightarrow |9, 6\rangle$ Übergang bei 2.87052 eV, $|16, 6\rangle \rightarrow |9, 5\rangle$ Übergang bei 2.87054 eV, $|16, 4\rangle \rightarrow |9, 3\rangle$ Übergang bei 2.87067 eV, $|16, 5\rangle \rightarrow |9, 4\rangle$ Übergang bei 2.87069 eV.

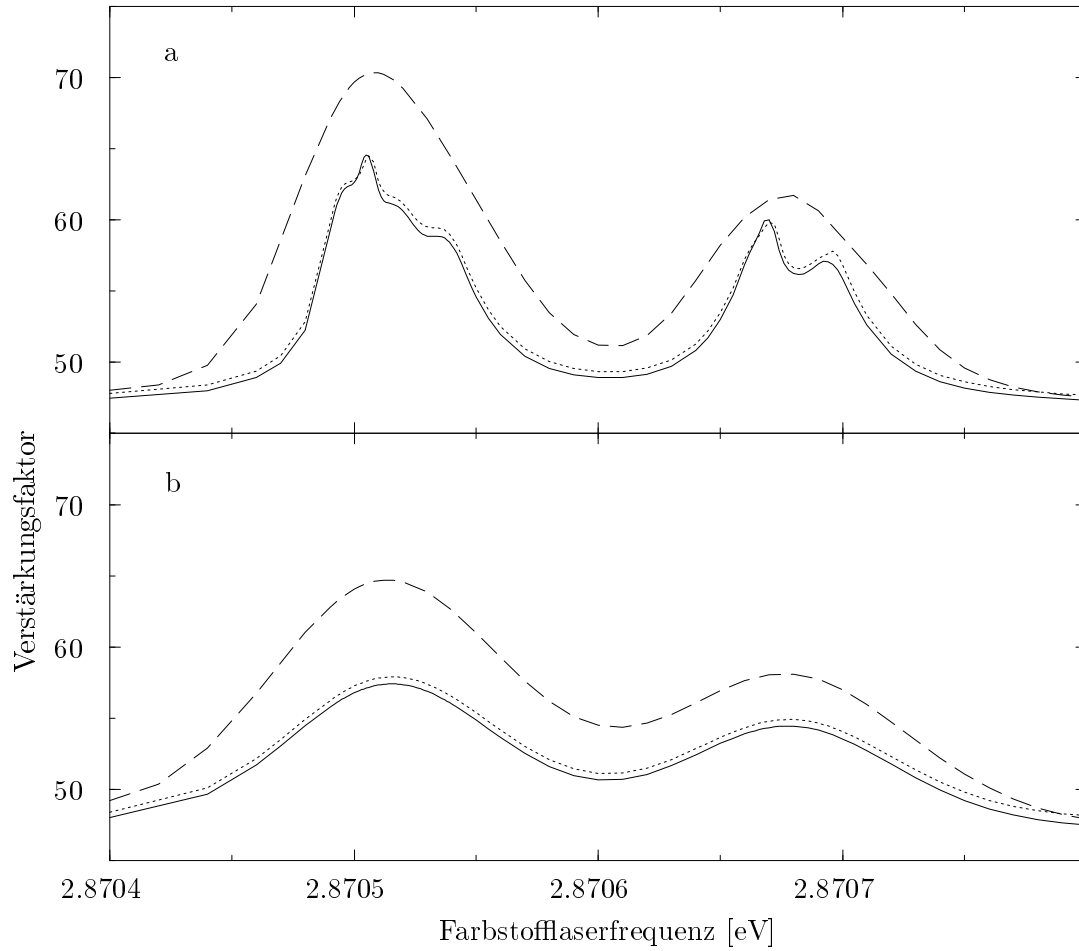


Abb. 5.10: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz (a) ohne und (b) mit inhomogener Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für normale Linienbreite und Abschnidefrequenz des Farbstofflasers. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet.

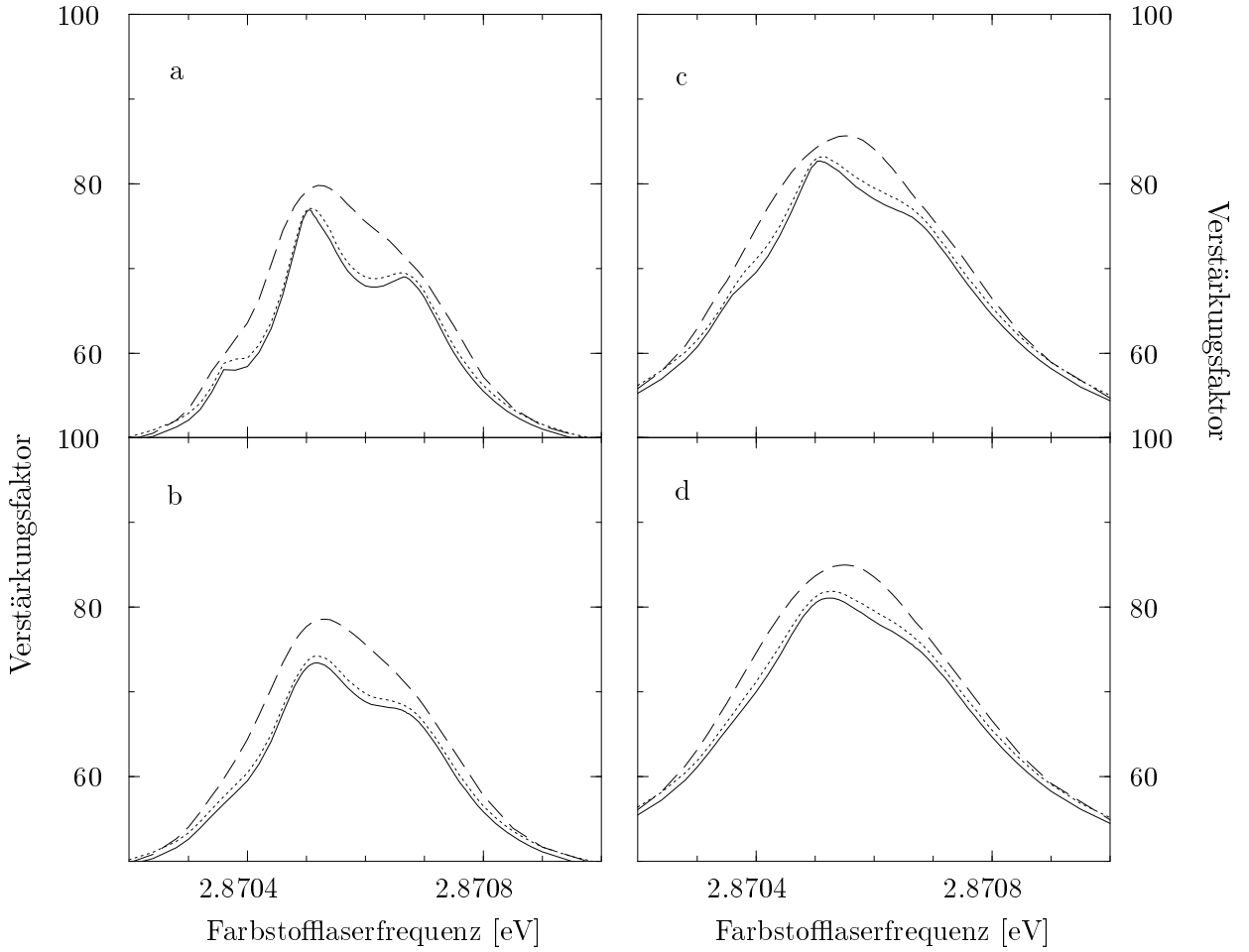


Abb. 5.11: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz (a, c) ohne und (b, d) mit inhomogener Verbreiterung durch die Impulsverteilung der Ionen für (a, b) $I_d = 3 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$ und (c, d) $I_d = 12 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschneidefrequenz des Farbstofflasers. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen für um den Faktor 10 reduzierte Linienbreite und Abschneidefrequenz des Farbstofflasers. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum für normale Linienbreite und Abschneidefrequenz des Farbstofflasers. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet. Die in (a) erkennbare Resonanz bei 2.87035 eV entspricht dem $|16, 2\rangle \rightarrow |9, 3\rangle$ Übergang.

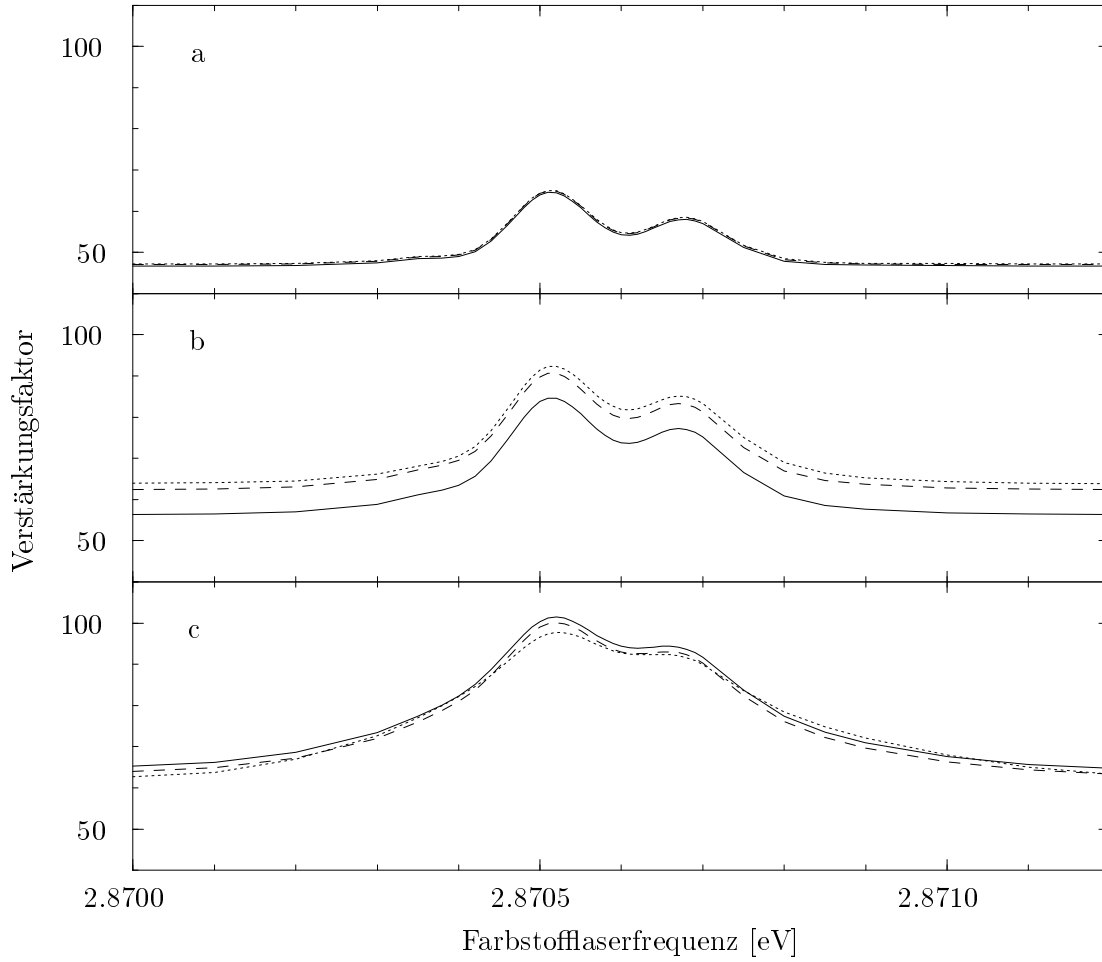


Abb. 5.12: Verstärkungsfaktor als Funktion der Farbstofflaserfrequenz für $I_d = 10^5 \text{ W/cm}^2$ und für die Nd:YAG Laser-Intensitäten (a) $I_Y = 10^8 \text{ W/cm}^2$ (Normalfall), (b) $I_Y = 10^9 \text{ W/cm}^2$ und (c) $I_Y = 10^{10} \text{ W/cm}^2$. Durchgezogene Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum. Gestrichelte Linie: Rechnung unter Verwendung der Ratengleichungen mit Kopplungen über das Kontinuum. Gepunktete Linie: Rechnung unter Verwendung der Dichtematrixgleichungen. Der Einfachheit halber wurden für die Rechnungen nur die Triplett-Energien von C^{4+} verwendet.

Für $I_Y = 10^{10}$ W/cm² liegen sämtliche induzierten Zerfallsraten bereits in der Größenordnung bzw. oberhalb der inversen Pulsdauer. Daher tritt, mit oder ohne Besetzungstransfer, Sättigung ein, d.h. Zustände mit hohem l werden bis zum Maximalwert p_0 besetzt. Alle drei Gleichungssysteme liefern damit folgerichtig wieder die gleiche Rekombinationsausbeute.

Wir sollten an dieser Stelle betonen, daß der hier und im Fall der vollständigen Entartung der Niveaus der oberen Gruppe diskutierte Besetzungstransfer letzten Endes zurückzuführen ist auf $|\text{Im}(\text{i}\Omega_{l,l+2})| > \Gamma_l$ für hohe l , was sich aus der Näherung (5.19 – 5.20) für $\text{Im}(\text{i}\Omega_{l,l+2})$ ergeben hat. Da die tatsächlichen Werte von $\text{Im}(\text{i}\Omega_{l,l+2})$ für hohe l aller Wahrscheinlichkeit nach unterhalb den errechneten liegen (dafür spricht die Tatsache, daß der rasche Abfall von Γ_l und $\text{Re}(\text{i}\Omega_{l,l+2})$ mit zunehmendem l für hohe l durch die Näherung für $\text{Im}(\text{i}\Omega_{l,l+2})$ nicht reproduziert wird), wäre es nicht verwunderlich, wenn die in diesen Spektren beobachteten Unterschiede, die auf den Besetzungstransfer über das Kontinuum zurückzuführen sind, unter Verwendung genauerer Werte für $\text{Im}(\text{i}\Omega_{l,l+2})$ verschwinden.

Alles in allem können wir feststellen, daß die Ratengleichungen, die Kopplungen über das Kontinuum nicht enthalten, genügen, um die Lage, Höhe und Breite der Resonanzen im Spektrum korrekt wiederzugeben. Da es jedoch noch eine Vielzahl von Möglichkeiten der Variationen von vor allem atomaren Parametern gibt, für die die Spektren von Dichtematrix- und Ratengleichungen noch nicht verglichen wurden, kann keine Garantie dafür abgegeben werden, daß die Verwendung dieser Ratengleichungen auch für die Beschreibung anderer, vergleichbarer Zweistufenrekombinationsexperimente ausreicht. Eine sorgfältige Analyse der relevanten Parameter im Hinblick auf die Kriterien für die Gültigkeit der Ratengleichung-Näherung, sowie gegebenenfalls explizite Vergleiche der numerischen Integrationen von Raten- und Dichtematrixgleichungen scheinen uns daher im allgemeinen angebracht zu sein.

Kapitel 6

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die allgemeine Theorie stimulierter Rekombination präsentiert. Es wurde gezeigt, wie und unter welchen Bedingungen das Kontinuum in den Dichtematrixgleichungen eliminiert werden kann, wenn die Anfangsbedingung einer statistischen Verteilung über das Kontinuum entspricht, und welche Korrekturen zu erwarten sind, falls man über die dabei verwendeten Näherungen hinausgeht. Außerdem wurde gezeigt, wie unter speziellen Bedingungen Ratengleichungen aus den Dichtematrixgleichungen hergeleitet werden. Im Fall isotroper Anfangsverteilung und unter weiteren, im allgemeinen relativ realistischen Annahmen hat sich erwiesen, daß Rekombinations- und Ionisationsprozesse abgesehen vom spontanen Zerfall und von der Anfangsbedingung formal durch äquivalente Gleichungssysteme beschrieben werden.

Die Anwendung auf den einfachsten Spezialfall der laserinduzierten Rekombination in einen diskreten gebundenen Zustand erlaubte uns, die Gültigkeitsbedingung für die Elimination des Kontinuums durch Vergleich mit einer genauen Rechnung explizit zu überprüfen. Bei der Anwendung auf den Fall der laserinduzierten Rekombination in eine Gruppe gebundener Zustände wurden die Auswirkungen der laserinduzierten Kopplungen über das Kontinuum für den Fall isotroper Anfangsverteilung untersucht. Im wesentlichen ergab sich, daß der hermitesche Anteil dieser Kopplungen Übergänge zwischen gebundenen Zuständen über das Kontinuum verursacht mit der Tendenz, die Besetzungen in diesen Zuständen anzugleichen, während der nichthermitesche Anteil die gesamte effektive Rekombinationsrate reduziert.

Wir haben außerdem gezeigt, welche Dichtematrix- bzw. Ratengleichungen man für den experimentell relevanten Fall der laserinduzierten Zweistufenrekombination erhält. Die Anwendung auf ein konkretes Zweistufenexperiment [7] ergab, daß ein vereinfachtes Ratengleichungssystem, das die Kopplungen über das Kontinuum nicht berücksichtigt, genügt, um das im Experiment erhaltene Spektrum zu reproduzieren. Es wurde untersucht, unter welchen Bedingungen Dichtematrixgleichungen, Ratengleichungen mit und Ratengleichungen ohne Kopplungen über das Kontinuum unterschiedliche Resultate liefern. Abgesehen vom unreali-

stischen Fall der vollständigen Entartung der Niveaus in der oberen Gruppe traten lediglich in einem bergrenztem Bereich der Intensität des Lasers, der die Rekombination aus dem Kontinuum induziert, merkliche Abweichungen im Signal-Hintergrund-Verhältnis auf, die durch Besetzungstransfer über das Kontinuum verursacht wurden und möglicherweise auf ungenaue Werte für die entsprechenden Kopplungskonstanten zurückzuführen sind.

Des weiteren wurde der allgemeine Formalismus auf laserinduzierte dielektronische Rekombination angewandt. Für das einfachst mögliche, aus einem gebundenen und einem autoionisierendem Zustand bestehende System wurden für isotrope Anfangsverteilung und unter den in [14] vorgenommenen vereinfachenden Annahmen Modellrechnungen durchgeführt. Dabei ergab sich, daß bei niedrigen Laserintensitäten die Spektren der laserinduzierten dielektronischen Rekombination mit den entsprechenden Autoionisationsspektren im wesentlichen übereinstimmen (abgesehen vom Beitrag spontaner dielektronischer Rekombination, der einen nichtverschwindenden Untergrund im Rekombinationsspektrum erzeugt), bei hohen Laserintensitäten jedoch beide Spektren erheblich voneinander abweichen. Außerdem hat sich erwiesen, daß die Ratengleichungen nur bei niedrigen Laserintensitäten und hohen Pulsdauern das Rekombinationsspektrum gut wiedergeben.

Neben den in dieser Arbeit diskutierten Spezialfällen lassen sich noch eine Vielzahl weiterer Rekombinationsprozesse mit dem in Kap. 2 entwickelten Formalismus beschreiben. Durch eine genaue Spezifikation der diskreten und der kontinuierlichen Zustände sowie durch die Verwendung von „Systemzuständen“ bei Laserkopplungen läßt sich jedes System, das keine Kontinuum-Kontinuum-Wechselwirkung beinhaltet, in das dem allgemeinen Formalismus zugrunde liegenden Modell (2.10 – 2.12) überführen.

Wie schon in Kap. 4.2 erwähnt, ist es nicht möglich, im Rahmen dieses Modells Übergänge zwischen verschiedenen Kontinuumzuständen zu berücksichtigen. Zwar lassen sich in das grundlegende Modell (2.1 – 2.3) Kontinuum-Kontinuum-Wechselwirkungen ohne weiteres einbeziehen, doch würden diese in einer wie in Kap. 2.2 durchgeführten Elimination des Kontinuums, in der nur Beiträge niedrigster Ordnung in die effektiven Dichtematrixgleichungen (2.30) eingehen, vollständig eliminiert werden. Um derartige Übergänge in die effektiven Dichtematrixgleichungen miteinzubeziehen, bedarf es der Entwicklung eines verallgemeinerten Formalismus, der analog zum Resolventenformalismus für Ionisationsprozesse (siehe z.B. [28]) in der Lage ist, einen geschlossenen, exakten Ausdruck für die Zeitentwicklung der uns interessierenden Dichtematrixelemente zu liefern, aus dem durch Störungsentwicklung sämtliche Beiträge höherer Ordnung mit beliebiger Genauigkeit extrahiert werden können.

Literaturverzeichnis

- [1] E. E. Fill, Phys. Rev. Lett. **56**, 1687 (1986).
- [2] F. B. Yousif *et al.*, Phys. Rev. Lett. **67**, 26 (1991).
- [3] U. Schramm *et al.*, Phys. Rev. Lett. **67**, 22 (1991).
- [4] A. Wolf, in *Recombination of Atomic Ions*, edited by W. Graham (Plenum Press, New York, 1992), S. 209.
- [5] S. Borneis *et al.*, Phys. Rev. Lett. **72**, 206 (1994).
- [6] T. Schüßler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 802 (1995).
- [7] T. Schüßler *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. B **98**, 146 (1995).
- [8] T. Schüßler, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 1995.
- [9] F. H. M. Faisal, A. Lami, and N. K. Rahman, J. Phys. B **14**, L569 (1981).
- [10] A. Lami, N. K. Rahman, and F. H. M. Faisal, Phys. Rev. A **30**, 2433 (1984).
- [11] S. N. Dixit and P. Lambropoulos, Phys. Rev. A **27**, 861 (1983).
- [12] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, in *Atom-Photon Interactions* (John Wiley & Sons, New York, 1992), Kap. V.
- [13] P. Zoller and P. Lambropoulos, J. Phys. B **12**, L547 (1979), sowie darin enthaltene Literaturhinweise.
- [14] P. Lambropoulos and P. Zoller, Phys. Rev. A **24**, 379 (1981).
- [15] S. J. van Enk, J. Zhang, and P. Lambropoulos, Appl. Phys. B **60**, S141 (1995).
- [16] J. Zhang, H. Bachau, and R. Gayet, Z. Phys. D **33**, 211 (1995).
- [17] H. van Regemorter, H. B. Dy, and M. Prud'homme, J. Phys. B **12**, 1053 (1979).
- [18] H. B. Dy and H. van Regemorter, J. Phys. B **12**, L715 (1979).

- [19] B. Edlén, in *Handbuch der Physik XXVII*, edited by S. Flügge (Springer, Heidelberg, 1964), S. 80.
- [20] L. Engström, P. Bengtsson, C. Jupén, and M. Westerlind, J. Phys. B **25**, 2459 (1992).
- [21] H. Marxer and L. Spruch, Phys. Rev. A **43**, 1268 (1991).
- [22] P. Maragakis, Berechnung von Energieniveaus und radialen Ortsmatrixelementen von C^{4+} mit der Quantendefekttheorie, private Mitteilung.
- [23] A. L’Huiller *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 1790 (1989).
- [24] T. Schübler, private Mitteilung.
- [25] *MATH/LIBRARY*, 2.0 ed., IMSL Inc., Houston, 1991.
- [26] T. Schübler, Originaldaten der Zweistufenrekombinationsmessung an C^{4+} , private Mitteilung.
- [27] T. Schübler, private Mitteilung.
- [28] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, in *Atom-Photon Interactions* (John Wiley & Sons, New York, 1992), Kap. III.